

明細書

有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置および表示装置

5 技術分野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、表示装置に関し、詳しくは発光輝度、発光効率及び長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、及び表示装置に関する。

10 背景技術

従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（ELD）がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子（以後、有機EL素子ともいう）が挙げられる。無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

一方、有機エレクトロルミネッセンス素子は、発光する化合物を含有する発光層を陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・りん光）を利用して発光する素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であり、更に自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために、省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

今後の実用化に向けた有機EL素子の開発としては、更に低消費電力で効率よく

高輝度に発光する有機EL素子が望まれているわけであり、例えば、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体又はトリススチリルアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドーピングし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成する技術（例えば、特許文献1参照。）が、また8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーピングした有機発光層を有する素子（例えば、
5 特許文献2参照。）が、更に、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドーピングした有機発光層を有する素子（例えば、特許文献3参照。）が報告されている。

上記文献に開示されている技術では、励起一重項からの発光を用いる場合、一重
10 項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が25%であることと、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率（ η_{ext} ）の限界は5%とされている。

ところが、プリンストン大より励起三重項からのりん光発光を用いる有機EL素子の報告（例えば、非特許文献1参照。）がされて以来、室温でりん光を示す材料
15 の研究（例えば、非特許文献2、特許文献5参照。）が活発になってきている。

励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ、照明用にも応用可能であり注目されている。

The 10th International Workshop on
20 Inorganic and Organic Electroluminescence (EL'00、浜松)では、燐光性化合物についていくつかの報告がなされている。例えば、Ikai等はホール輸送性の化合物を燐光性化合物のホストとして用いている。また、M. E. Thompson等は、各種電子輸送性材料

を燐光性化合物のホストに新規なイリジウム錯体をドーブして用いている。さらに、
T s u t s u i 等は、正孔阻止層（エキシトン阻止層）の導入により高い発光輝度
を得ている。正孔阻止層としては、その他、5配位のアルミニウム錯体を使用する
例（例えば、特許文献5、6参照）、ビスカルbazol誘導体を使用する例（例え
5 ば特許文献7参照）、及びI k a i 等は、ホールブロック層（エキシトンブロック
層）としてフッ素置換化合物を用いることにより、高効率な発光を達成している（例
えば非特許文献3参照）。

【特許文献1】

特許第3093796号明細書

10

【特許文献2】

特開昭63-264692号公報

【特許文献3】

特開平3-255190号公報

【特許文献4】

15

特開2000-21572号公報

【特許文献5】

特開2001-284056号公報

【特許文献6】

特開2002-8860号公報

20

【特許文献7】

特開2003-31371号公報

【非特許文献1】

M. A. B a l d o e t a l. , n a t u r e、395巻、

151～154ページ（1998年）

【非特許文献2】

M. A. Baldo et al., nature、403巻、
17号、750－753ページ（2000年）

5 【非特許文献3】

Appl. Phys. Lett., 79巻、156ページ（2001
年）

しかしながら、従来の有機EL素子のいずれも発光輝度、発光効率が高く、長寿命であるものは得られていない。

- 10 また、現在のところ単一の発光材料で白色発光を示すものがないため、複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて混色により白色発光を得ている。複数の発光色の組み合わせとしては、青色、緑色、赤色の3原色の3つの発光極大波長を含有させたものや、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した2つの発光極大波長を含有したもの等が考えられるが、いずれにしても青色を利用する以
- 15 上白色に関しても、発光輝度、発光効率が高く、長寿命である白色発光の素子が発見されていないのが現状である。

本発明は係る課題に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、発光輝度、発光効率が高く長寿命である有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置および表示装置を提供することである。

20

発明の開示

本発明の上記目的は下記構成により達成された。

- （1） 陽極と陰極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有す

る有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層と前記陰極との間にあり、前記発光層に隣接する隣接層を有し、該隣接層に、HOMOが -5.7 eV ～ -7.0 eV 、LUMOが -1.3 eV ～ -2.3 eV であり電子吸引基を有する化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

5 (2) 前記化合物は、HOMOが -5.9 eV ～ -6.8 eV 、LUMOが -1.6 eV ～ -2.1 eV であることを特徴とする前記1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(3) 前記電子吸引基は、 $-\text{CF}_3$ 、 $-\text{F}$ 、 $-\text{CN}$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}$ (Rはアルキル基を表す。)から選ばれる少なくとも一つであることを特徴とする前記1又は2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(4) 発光が青色であることを特徴とする前記1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(5) 発光が白色であることを特徴とする前記1～3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

15 (6) 前記1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする表示装置。

(7) 前記1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする照明装置。

(8) 前記7に記載の照明装置と、表示手段としての液晶素子とを具備すること
20 とを特徴とする表示装置。

図面の簡単な説明

第1図は有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

第2図は表示部の模式図である。

第3図は画素の模式図である。

第4図はパッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図である。

第5図は照明装置の概略図である。

5 第6図は照明装置の断面図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明者等は、鋭意検討の結果、陽極と陰極の間にリン光性化合物を含有する発
10 光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層と陰
極との間に存在して発光層に隣接する隣接層を有しており、この隣接層にHOMO
が $-5.7\text{ eV} \sim -7.0\text{ eV}$ 、LUMOが $-1.3 \sim -2.3\text{ eV}$ を満たし電子
吸引基を有する化合物を含有させることで、高い発光輝度、発光効率を有し、さら
に発光寿命の長い有機EL素子とすることができることを見出した。

15 即ち、HOMOが $-5.7\text{ eV} \sim -7.0\text{ eV}$ 、LUMOが $-1.3 \sim -2.3$
 eV を満たし電子吸引基を有する化合物を含有させた層は、分子自身のカチオンラ
ジカルを安定化させ、かつ正孔を阻止する効果が非常に高い層とすることができ、
特にこの層を陰極側でリン光性化合物を含有する発光層に隣接する隣接層として
設けることで、従来に比べ発光輝度、発光効率が高く、長寿命である有機EL素子
20 とすることができることを見出した。

本発明に係る化合物は電子吸引基を有すが、電子吸引基とは、ハメットの置換基
定数 σ_p が0より大きい値を示す基と定義する。ハメットの σ_p の値は、Hammett
等によって安息香酸エチルの加水分解に及ぼす置換基の電子的効果から求

められた置換基定数であり、『薬物の構造活性相関』（南江堂：1979年）等に詳しく記載されている。

電子吸引基として具体的には、ハロゲン（フッ素原子等）、シアノ基、ニトロ基、トリフルオロメチル基などのポリハロアルキル基、ペンタクロロフェニル基のようなポリハロアリール基、ホルミル基、アルキルまたはアリールカルボニル基、カルバモイル基、アルキルまたはアリールスルフィニル基、アルキルまたはアリールスルホニル基、アルキルまたはアリールスルホニルオキシ基、スルファモイル基、ホスフェノ基、ホスフィンオキシド基、ホスホン酸エステル基、ホスホン酸アミド基、アリールアゾ基、などが例として挙げられる。さらにこれらの基は、置換されてい

10 てもよい。

本発明において、電子吸引基は、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。なお、 R はアルキル基又はアリール基である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

15 本発明において、HOMO、LUMOの値は、米国Gaussian社製の分子軌道計算用ソフトウェアであるGaussian98（Gaussian98、Revision A.11.4, M. J. Frisch, et al, Gaussian, Inc., Pittsburgh PA, 2002.）を用いて計算した時の値であり、キーワードとしてB3LYP/6-31G*を用いて構造最適化を

20 行うことにより算出した値（eV単位換算値）の小数点第2位を四捨五入した値と定義する。

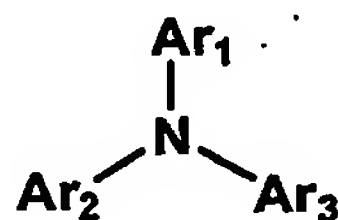
この計算値が有効な背景には、この手法で求めた計算値と実験値の相関が高いためである。

本発明において、化合物のHOMOが $-5.9\text{ eV} \sim -6.8\text{ eV}$ 、LUMOが $-1.6 \sim -2.1\text{ eV}$ であることがより好ましく、これにより、発光輝度、発光効率を一層高くし、より長寿命である有機EL素子とすることができる。

本発明に係る化合物は、下記一般式(1)で表される化合物であることが好まし

5 い。

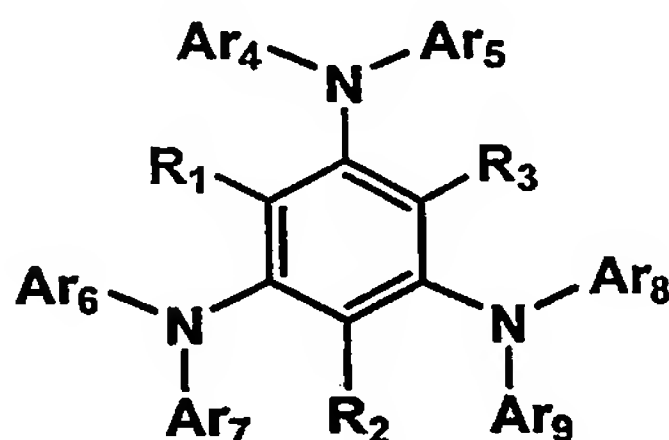
一般式(1)



一般式(1)は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、Ar₁~Ar₃は、置換基を有してよいアリール基を表す。電子吸引基としては、 $-\text{CF}_3$ 、 $-\text{F}$ 、 $-\text{CN}$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-\text{CF}_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

15 本発明に係る化合物は、下記一般式(2)で表される化合物であることが好ましい。

一般式(2)

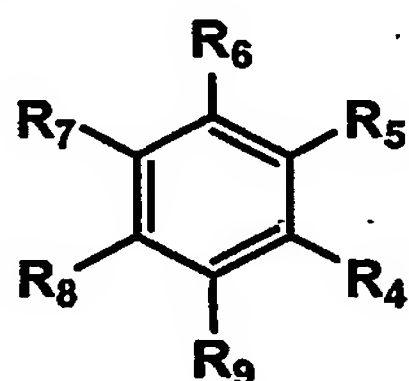


一般式(2)は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、Ar₄~Ar₉は、
20 置換基を有してよいアリール基を表し、R₁~R₃は、各々独立に水素原子、又は置

換基を表す。電子吸引基としては、 $-\text{CF}_3$ 、 $-\text{F}$ 、 $-\text{CN}$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-\text{CF}_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

本発明に係る化合物は、下記一般式（３）で表される化合物であることが好ましい。

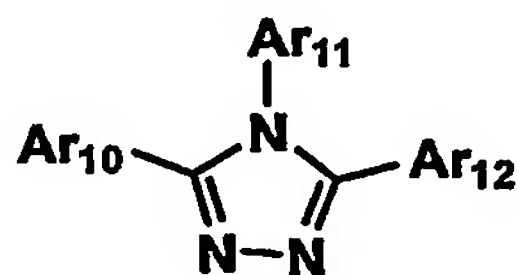
一般式（３）



一般式（３）は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 $\text{R}_4 \sim \text{R}_9$ は、各々独立に水素原子、又は置換基を表す。電子吸引基としては、 $-\text{CF}_3$ 、 $-\text{F}$ 、 $-\text{CN}$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-\text{CF}_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

本発明に係る化合物は、下記一般式（４）で表される化合物であることが好ましい。

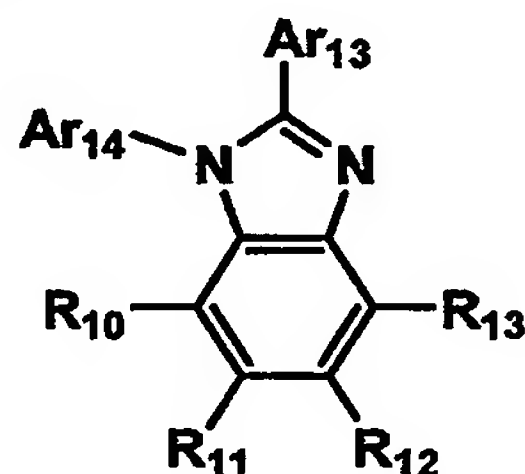
一般式（４）



一般式(4)は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 $Ar_{10} \sim Ar_{12}$ は、置換基を有してよいアリール基を表す。電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

本発明に係る化合物は、下記一般式(5)で表される化合物であることが好ましい。

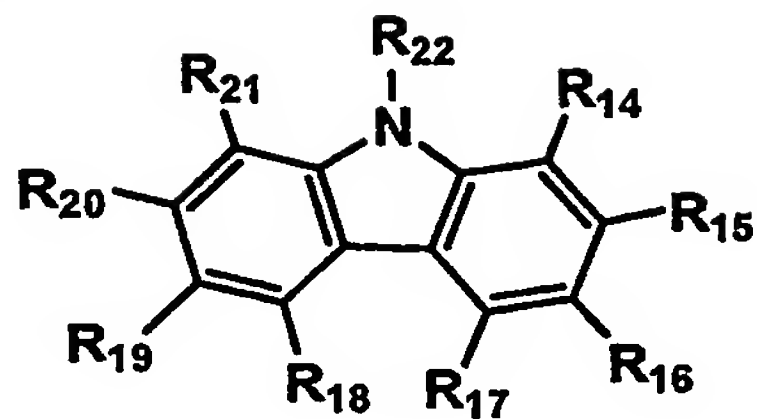
一般式(5)



一般式(5)は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 Ar_{13} 、 Ar_{14} は、置換基を有してよいアリール基を表し、 $R_{10} \sim R_{13}$ は、各々独立に水素原子、又は置換基を表す。電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

本発明に係る化合物は、一般式(6)で表される化合物であることが好ましい。

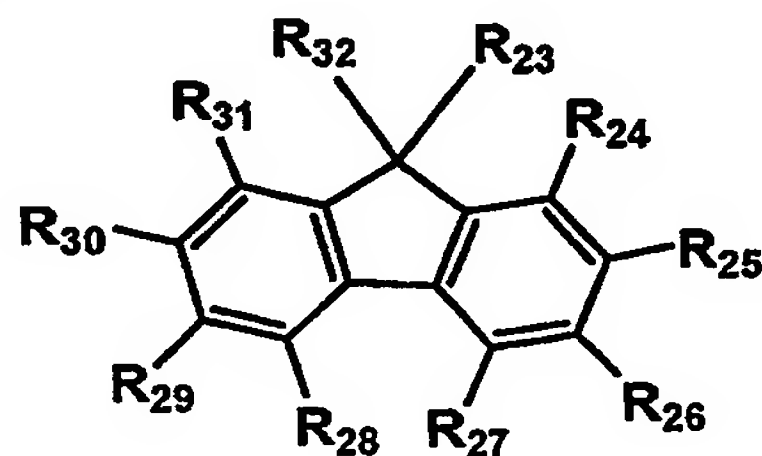
一般式 (6)



一般式 (6) は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 $R_{14} \sim R_{22}$ は、各々独立に水素原子、又は置換基を表す。電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

10 本発明に係る化合物は、下記一般式 (7) で表される化合物であることが好ましい。

一般式 (7)

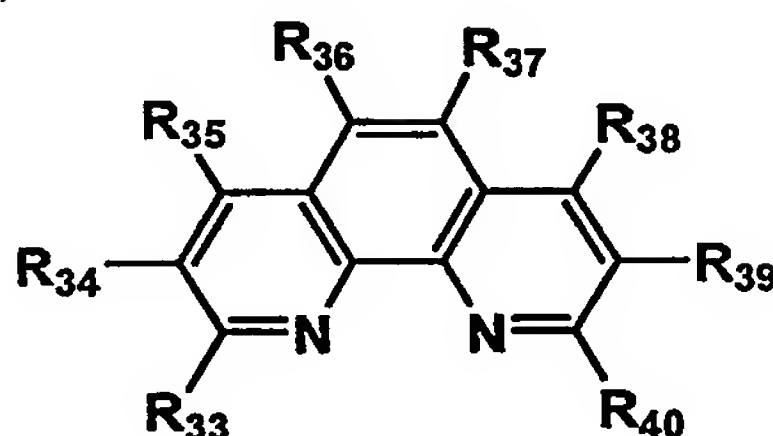


15 一般式 (7) は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 $R_{23} \sim R_{32}$ は、各々独立に水素原子、又は置換基を表す。電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命と

することができる。

本発明に係る化合物は、下記一般式（８）で表される化合物であることが好ましい。

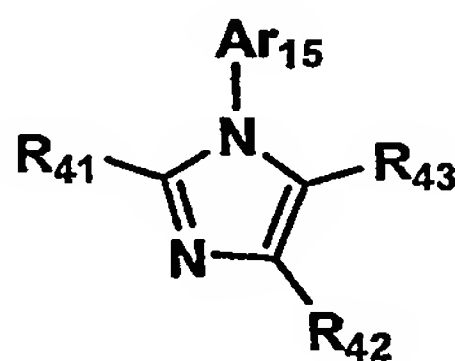
一般式（８）



一般式（８）は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 $R_{33} \sim R_{40}$ は、各々独立に水素原子、又は置換基を表す。電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

本発明に係る化合物は、下記一般式（９）で表される化合物であることが好ましい。

一般式（９）

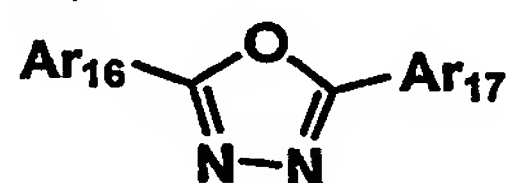


一般式（９）は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 Ar_{15} は、置換基を有してよいアリール基を表し、 $R_{41} \sim R_{43}$ は、各々独立に水素原子、又は置換基を表す。電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少

なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

- 5 本発明に係る化合物は、下記一般式(10)で表される化合物であることが好ましい。

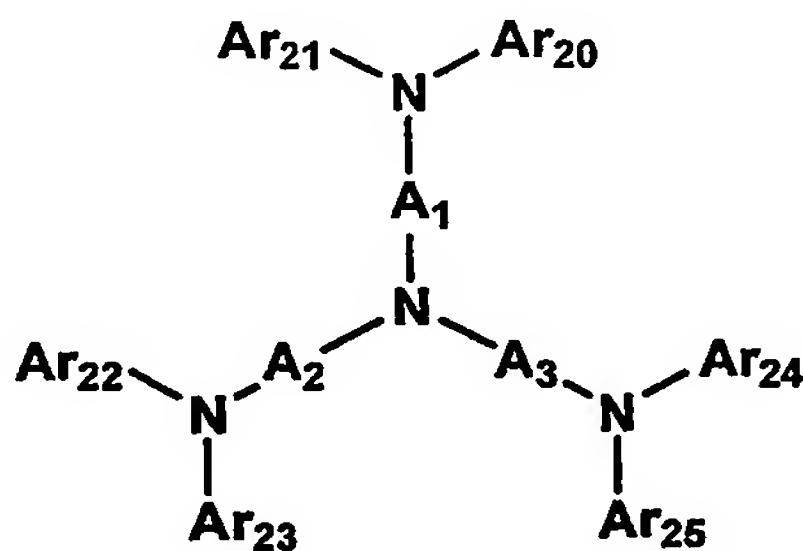
一般式(10)



- 一般式(10)は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 Ar_{16} 、 Ar_{17} は、置換基を有してよいアリール基を表す。電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。
- 10
- 15

本発明に係る化合物は、下記一般式(11)で表される化合物であることが好ましい。

一般式(11)

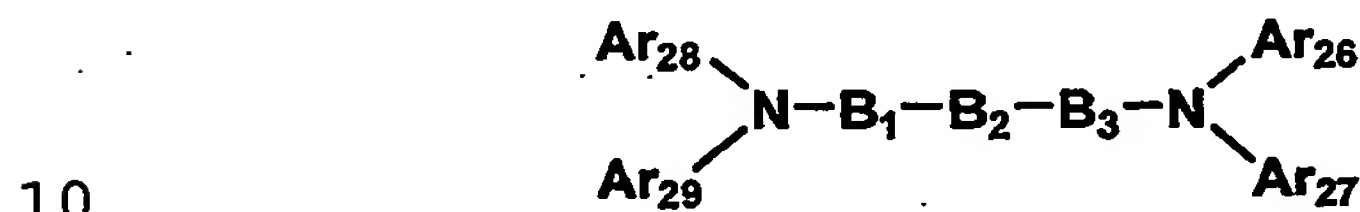


- 20 一般式(11)は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 $Ar_{20} \sim Ar_{25}$

は、置換基を有してよいアリール基を表し、 $A_1 \sim A_3$ はアリーレン基を表す。す。
 電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも
 一つであることが好ましく、最も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高
 い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基
 5 は、アリール基に置換していることが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発
 光効率を有し、一層長寿命とすることができる。

本発明に係る化合物は、下記一般式(12)で表される化合物であることが好ま
 しい。

一般式(12)



一般式(12)は分子内に少なくとも一つの電子吸引基を有し、 $Ar_{26} \sim Ar_{29}$
 は、置換基を有してよいアリール基を表し、 B_1 、 B_3 はアリーレン基を表し、 B_2
 は単なる結合手、または、二価の連結基を表す。電子吸引基としては、 $-CF_3$ 、
 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$ から選ばれる少なくとも一つであることが好ましく、最
 15 も好ましくは、 $-CF_3$ である。これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、
 一層長寿命とすることができる。また、電子吸引基は、アリール基に置換している
 ことが好ましく、これにより一層高い発光輝度、発光効率を有し、一層長寿命とす
 ることができる。

本発明の一般式(1)～(12)におけるアリール基としては、フェニル基、ナ
 20 フチル基、ビフェニル基、フルオレニル基等が挙げられる。アリール基は置換され
 ていてもよくアリール基への置換基としては、電子吸引基($-CF_3$ 、 $-F$ 、 $-CN$ 、 $-SO_2R$)、
 アルキル基(例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒ

ドロキシエチル基、メトキシメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基(例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロフェニル基、シアノ基、アルキルスルホニル基(メチルスルホニル基等)、ハロゲン原子(フッ素原子等)、アリール基(例えばフェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基、メシチル基等)、ヘテロアリール基、アルコキシ基(例えばメトキシ基等)、等が挙げられる。アリール基への置換基としてはフェニル基が好ましく、トリアリールアミン誘導体がトリフェニルアミン誘導体となっていることが好ましい。

本発明において置換基は、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、アリール基(例えば、フェニル基等)、ヘテロアリール基(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジル基、ピリミジル基、ピラジル基、トリアジル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリル基、フタラジル基等)、ヘテロ環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホルル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等)、シクロアルコキシ基(例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等)、シクロアルキ

- ルチオ基（例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、アリアルチオ基（例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等）、アルコキシカルボニル基（例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等）、
- 5 アリアルオキシカルボニル基（例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等）、スルファモイル基（例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナ
- 10 フチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等）、アシル基（例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等）、アシルオキシ基（例えば、アセチルオキシ基、
- 15 エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等）、アミド基（例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シ
- 20 クロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等）、カルバモイル基（例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル

基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基(フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)、等が挙げられる。

これらの置換基は、上記の置換基によってさらに置換されていてもよい。

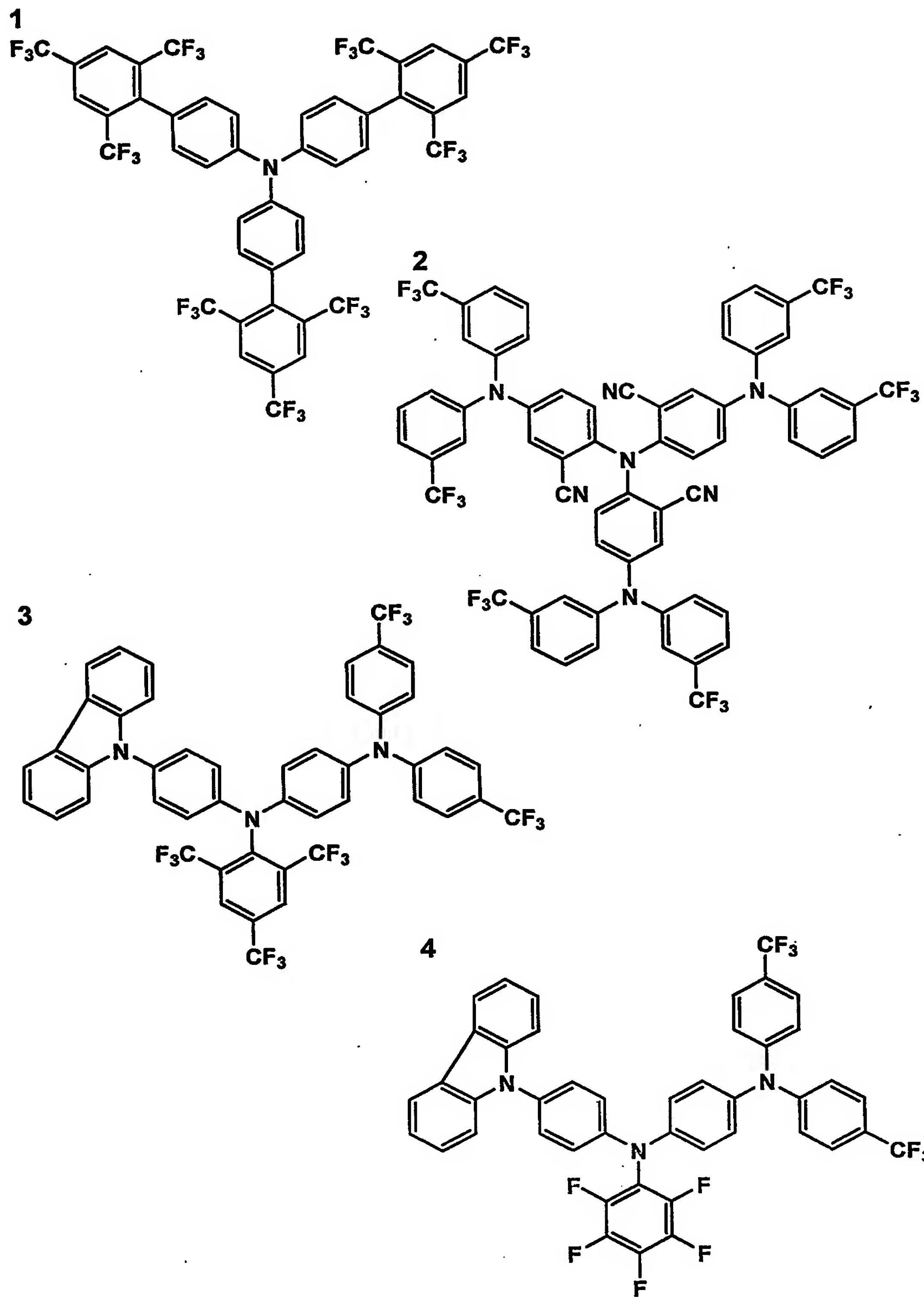
置換基としては、好ましくは、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、また

は、アリアル基である。

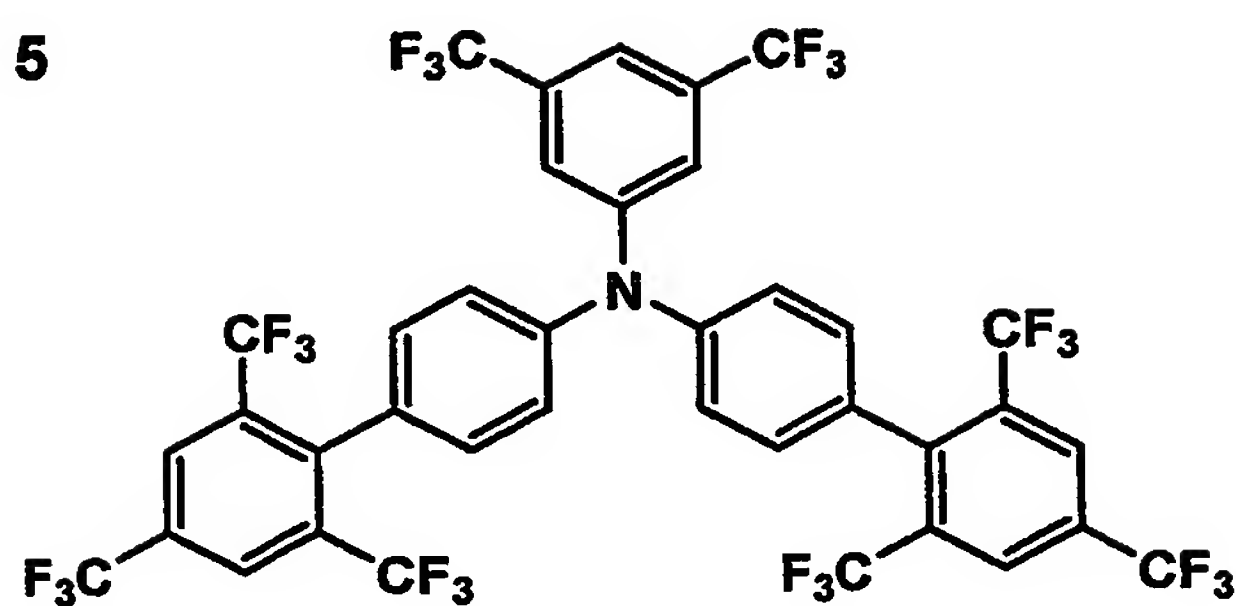
本発明の一般式(1 1)、(1 2)におけるアリーレン基としては、具体的には、フェニレン基、ナフチレン基、アンスリレン基、フェナントレニレン基、ピレニレン基、ペリレニレン基、フルオレニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、
5 ルブレニレン基、クリセニレン基、トリフェニレニレン基、ベンゾアンスリレン基、ベンゾフェナントレニレン基、ジフェニルアンスリレン基などが挙げられ、これらのアリーレン基はさらに前述した置換基を有していても良い。好ましくは、フェニレン基、フルオレニレン基、である。

本発明の一般式(1 2)における二価の連結基としては、具体的には、アリーレン基、ヘテロアリーレン基、フルオレニレン基、アルキレン基、アルケニレン基、
10 アルキニレン基、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-N(R_o)-$ (R_o はアルキル基又は置換しても良いアリアル基である)、またはこれらの組み合わせが挙げられる。

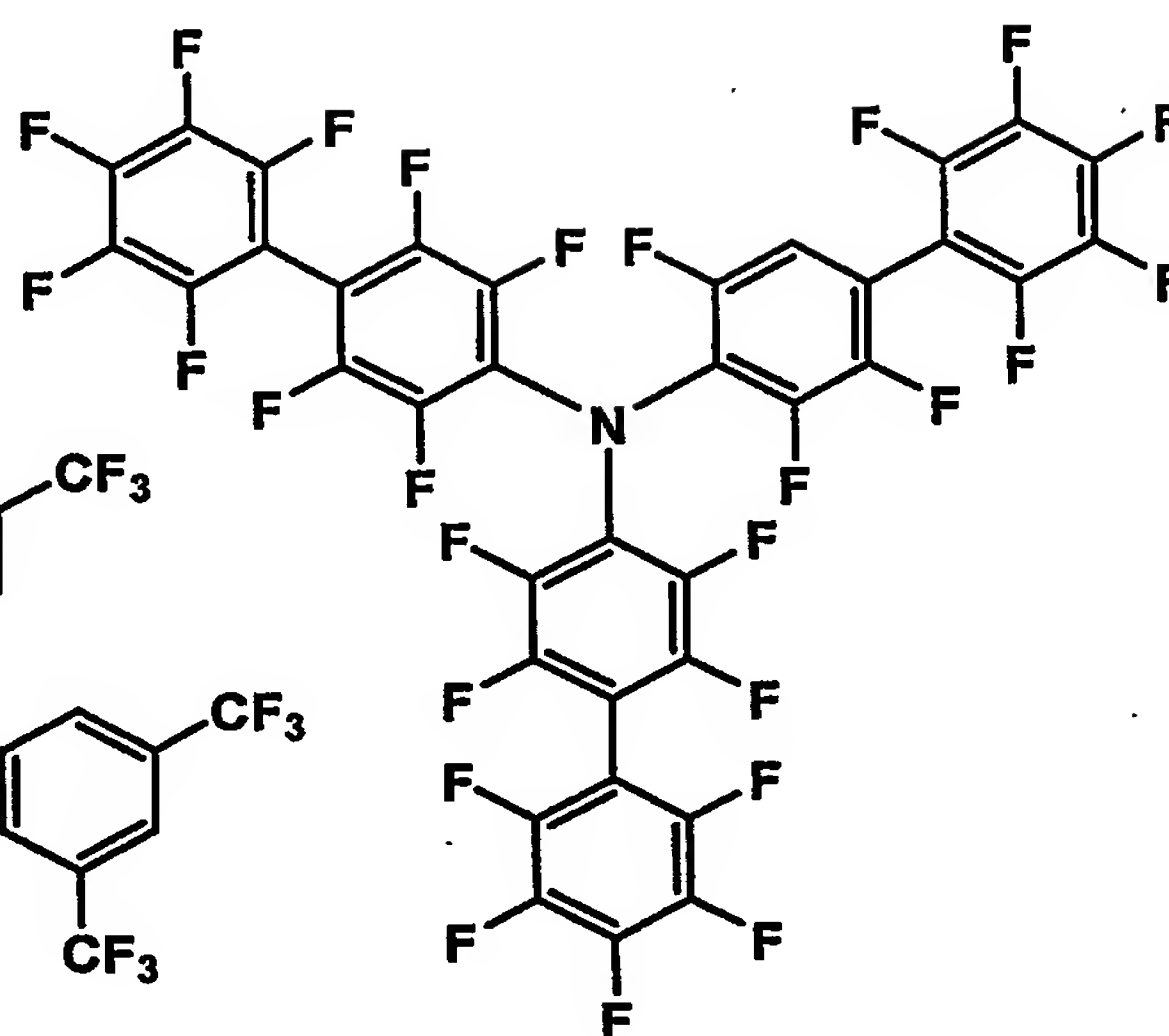
以下に、本発明に係る化合物の具体例を示すが、本発明は、これらに限定されるものではない。



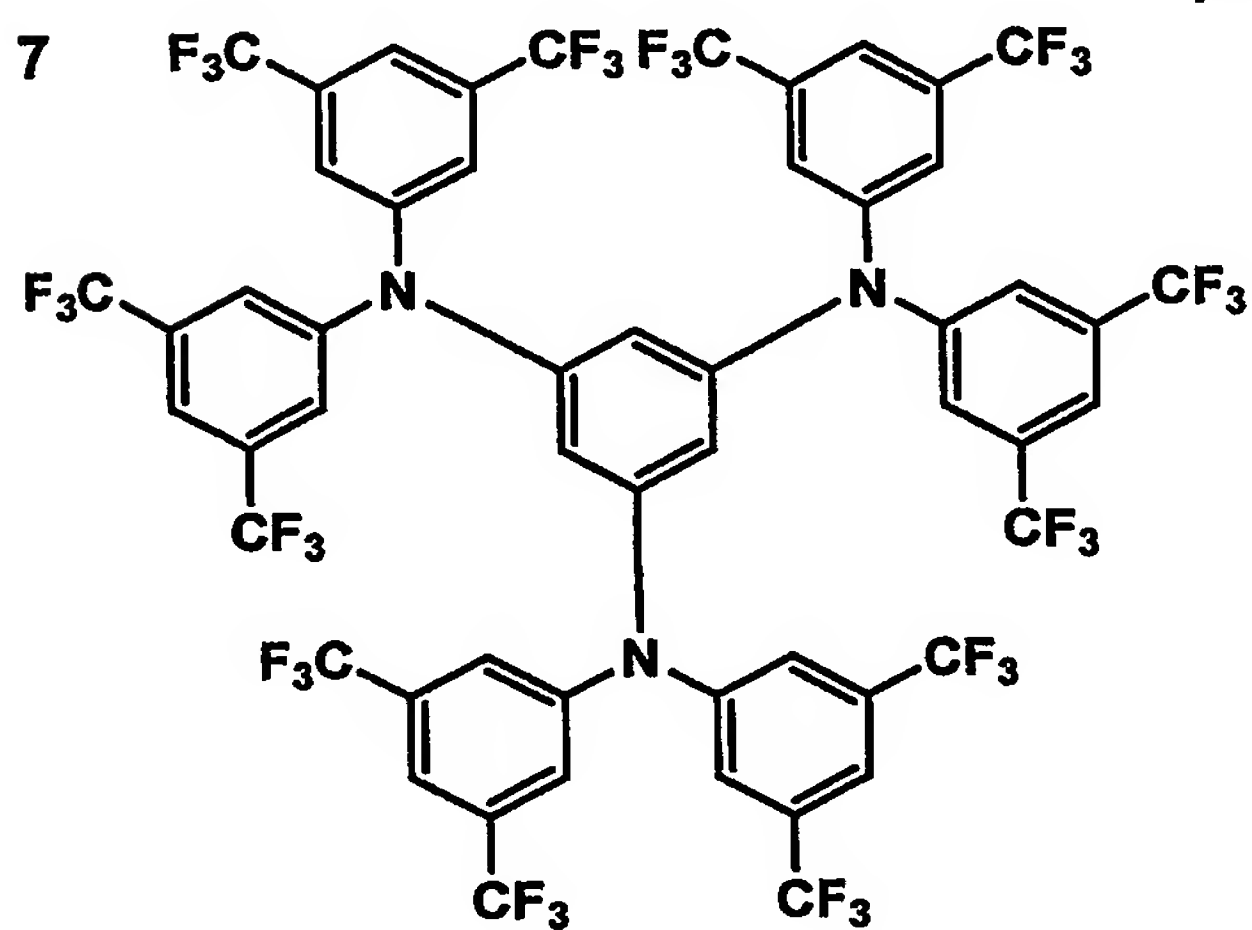
5



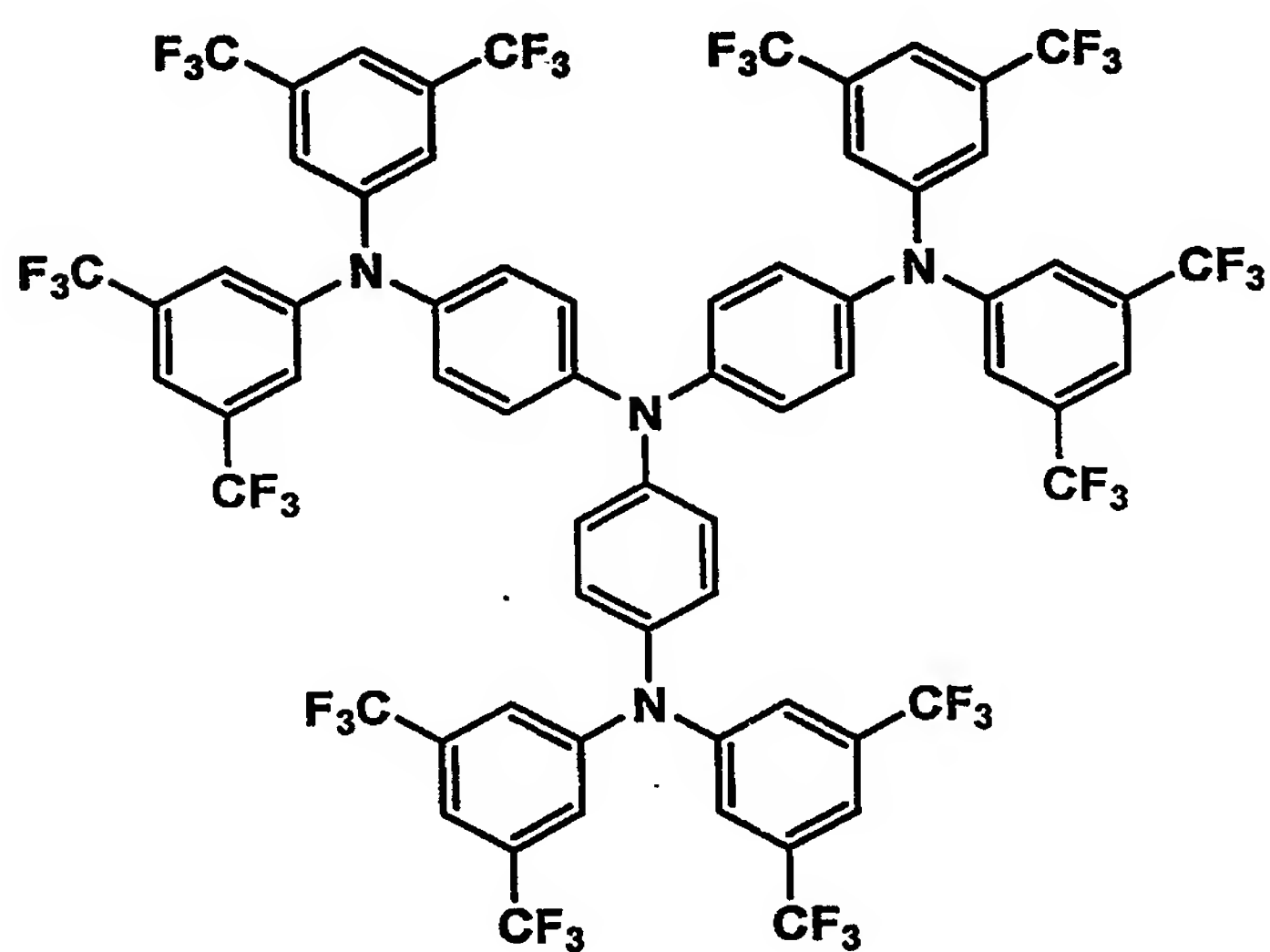
6



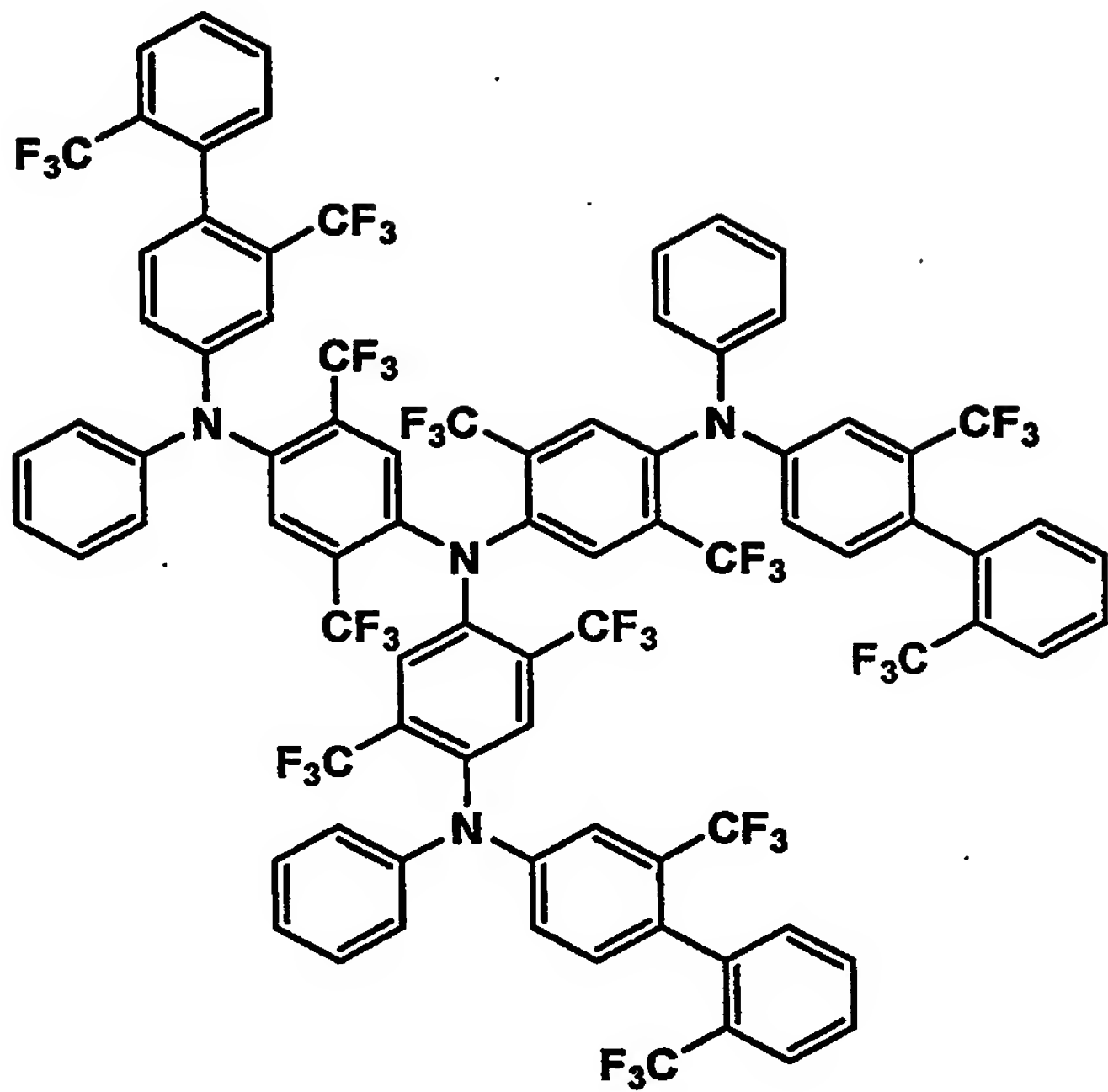
7



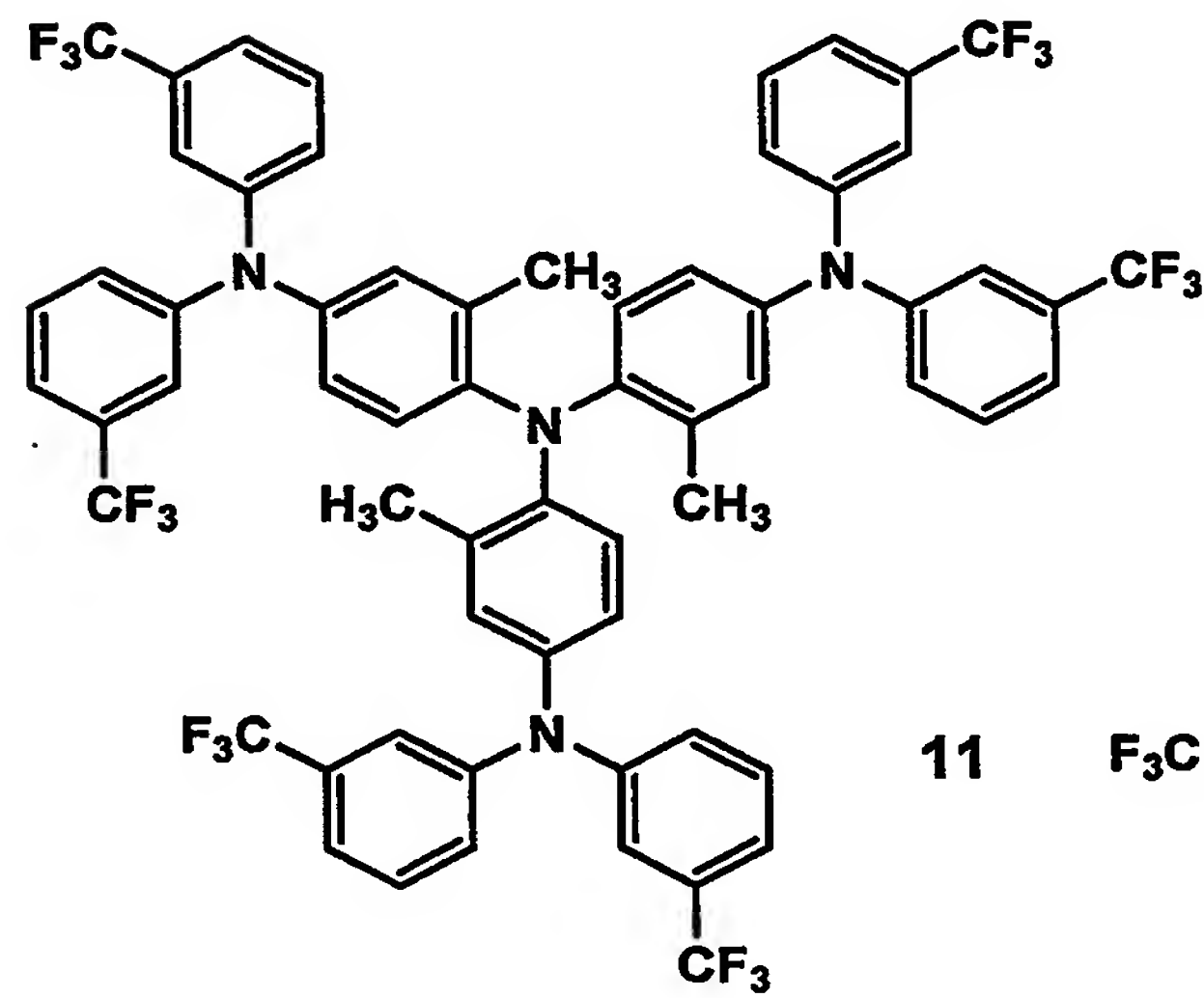
8



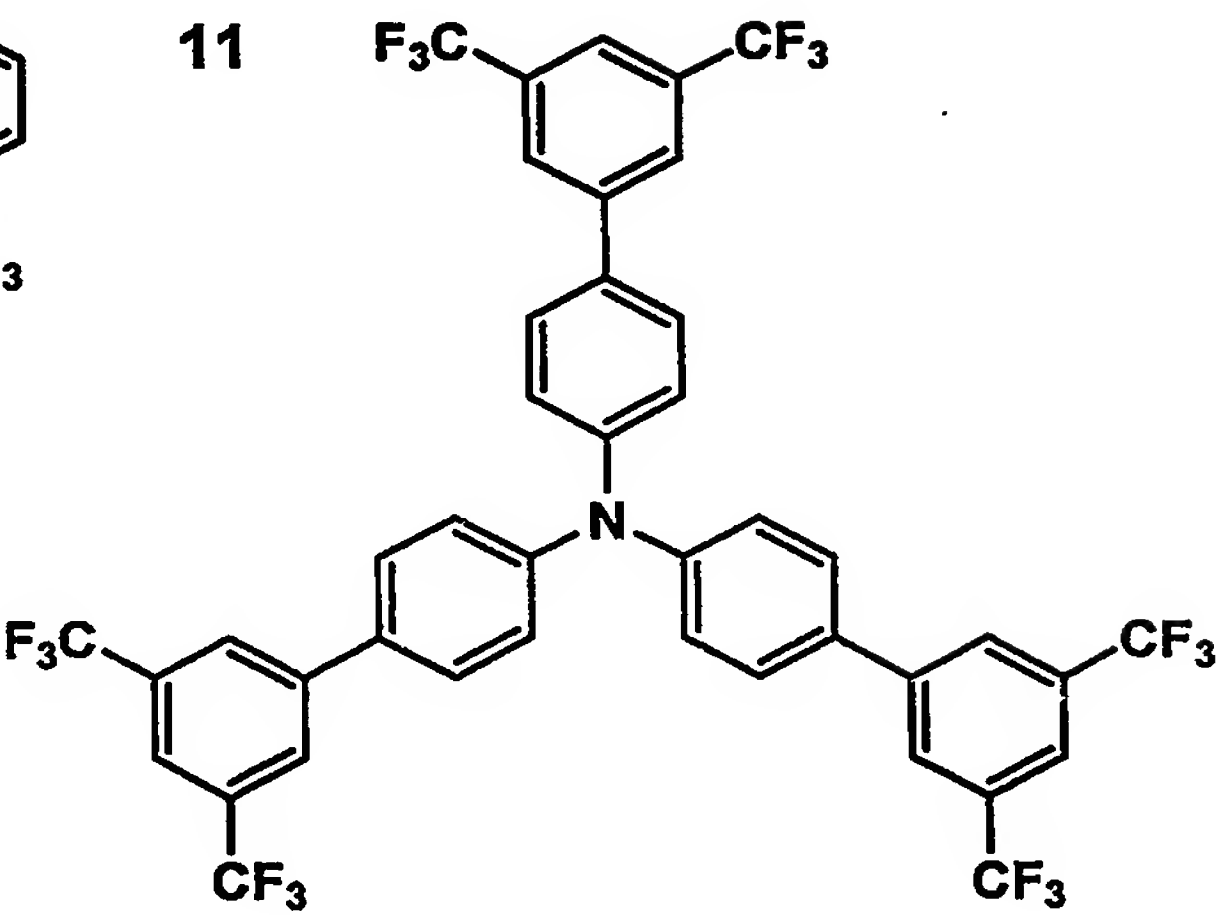
9



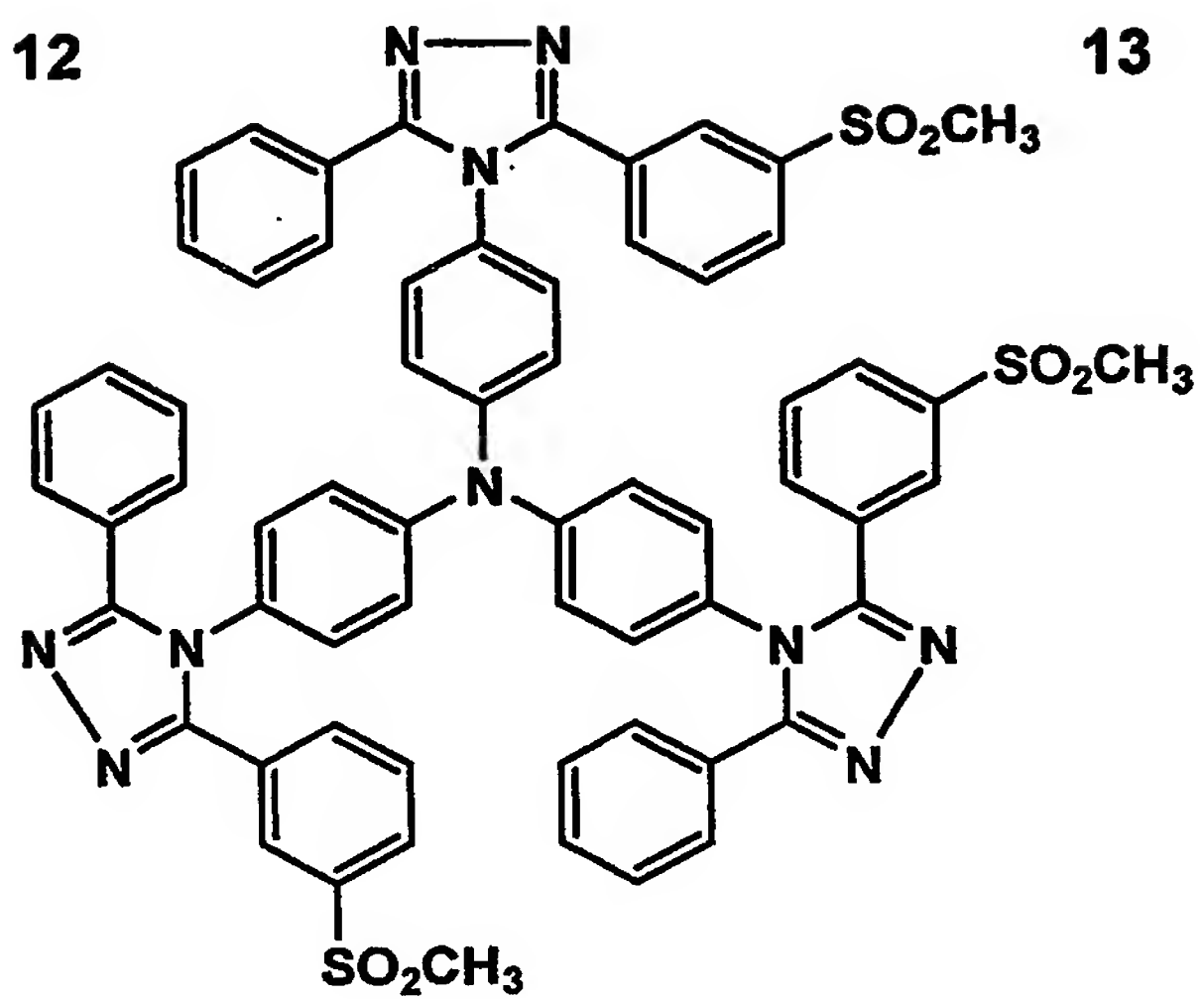
10



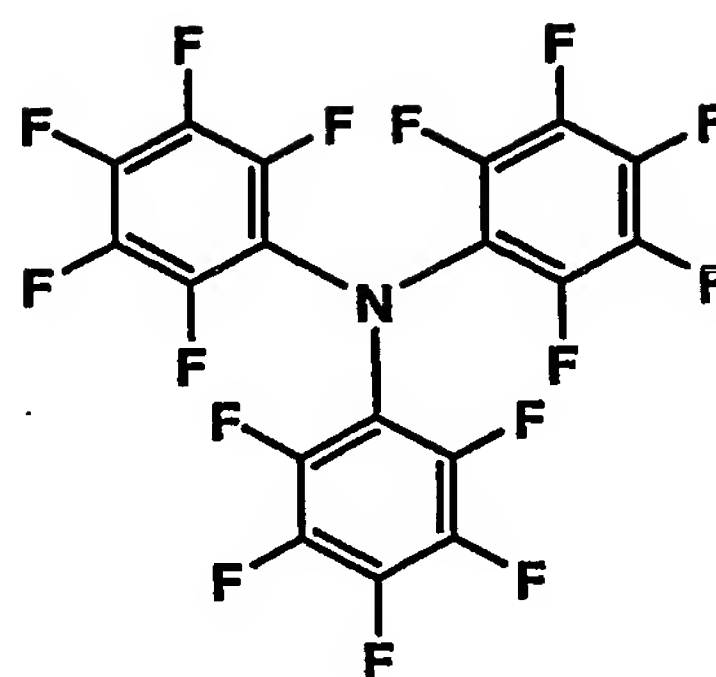
11



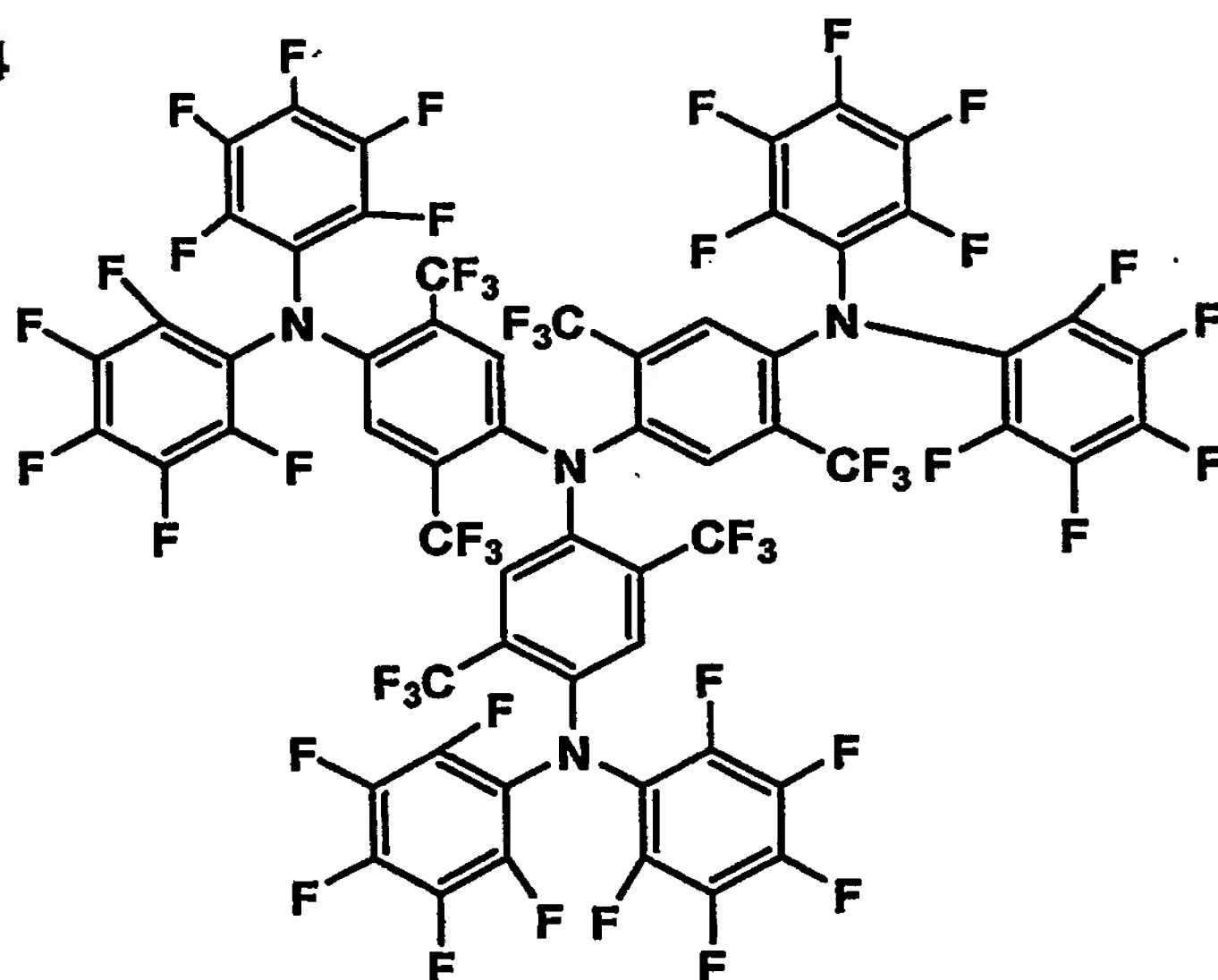
12



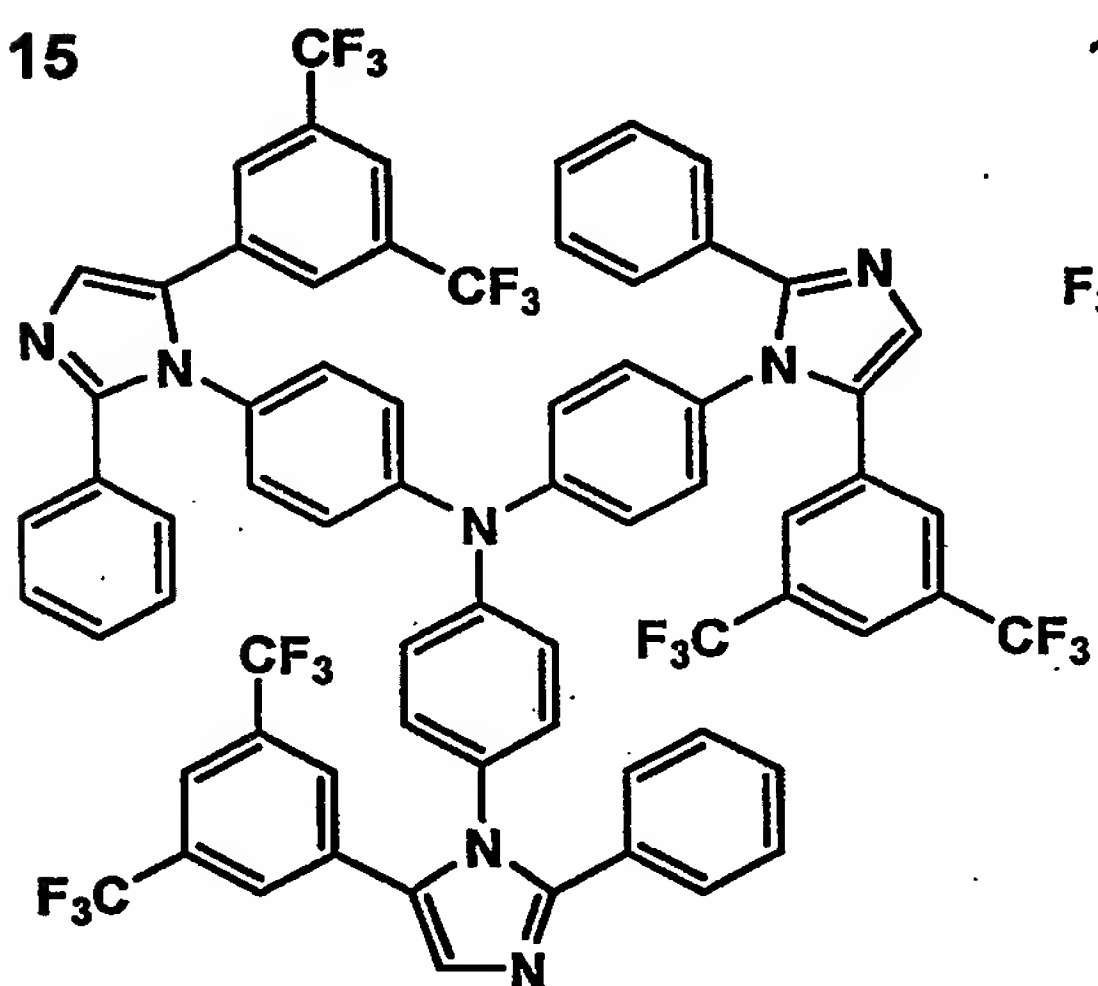
13



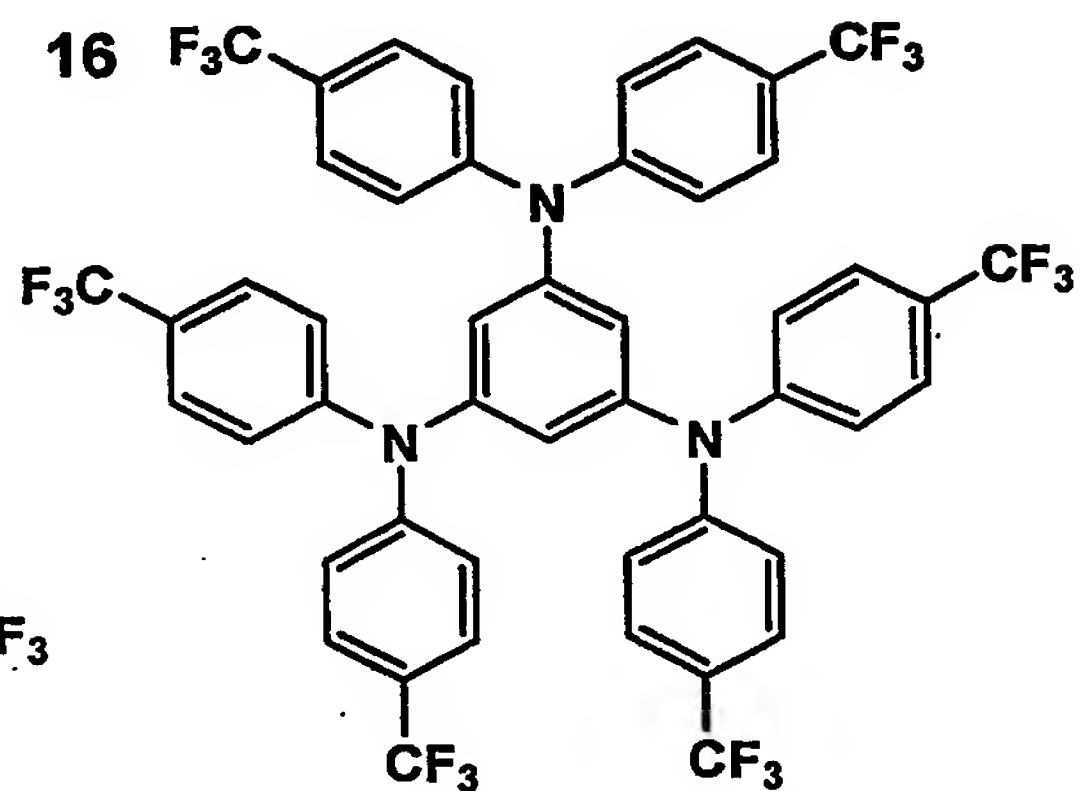
14



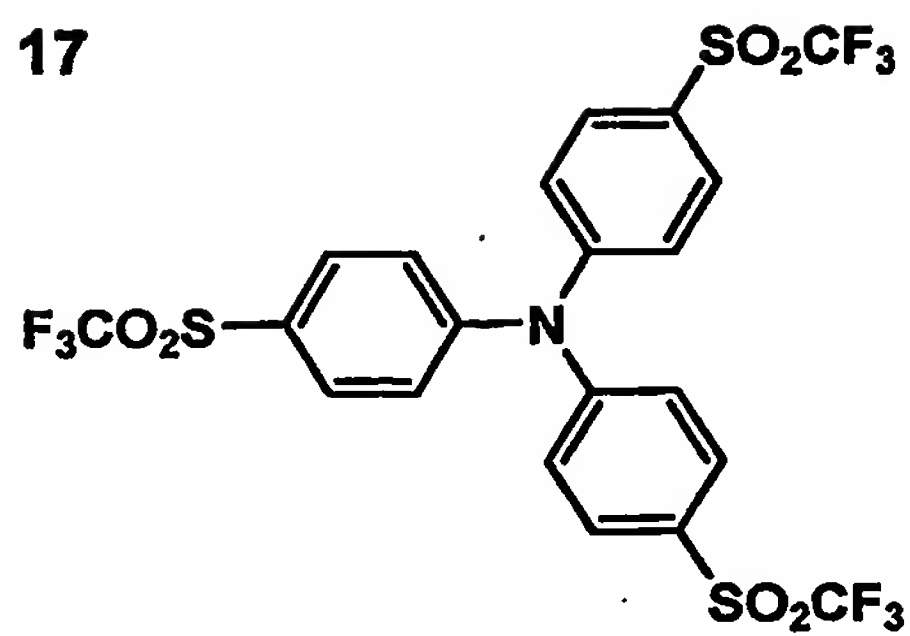
15



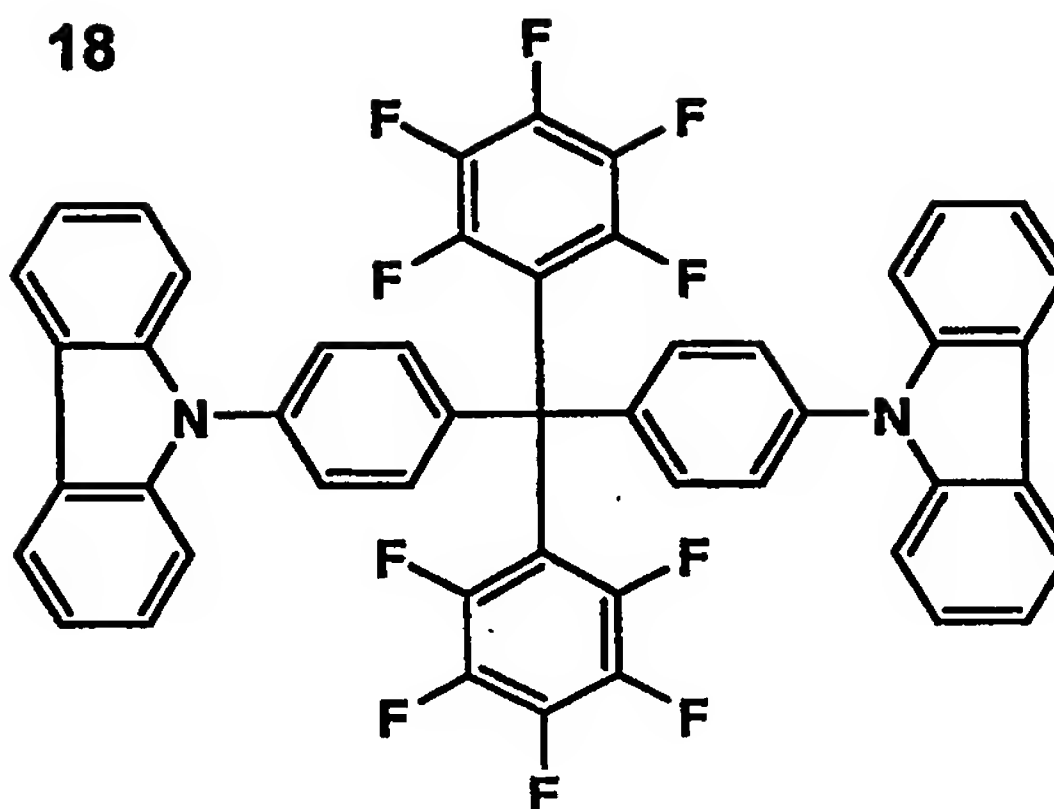
16



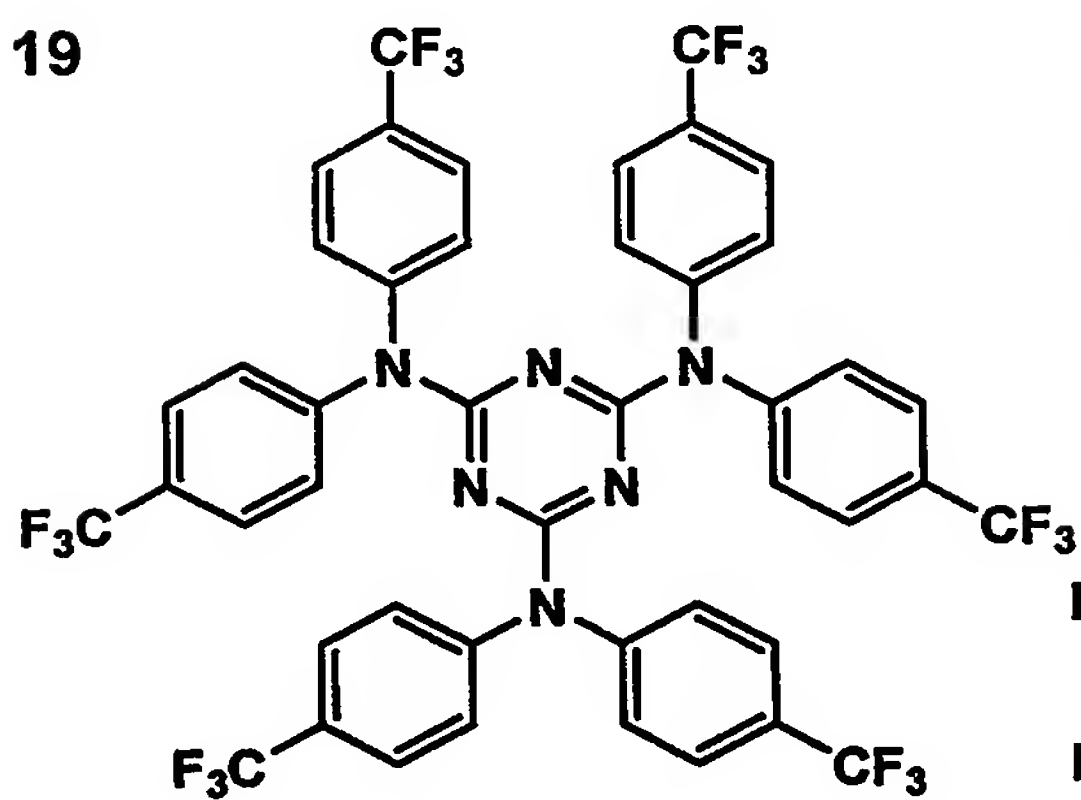
17



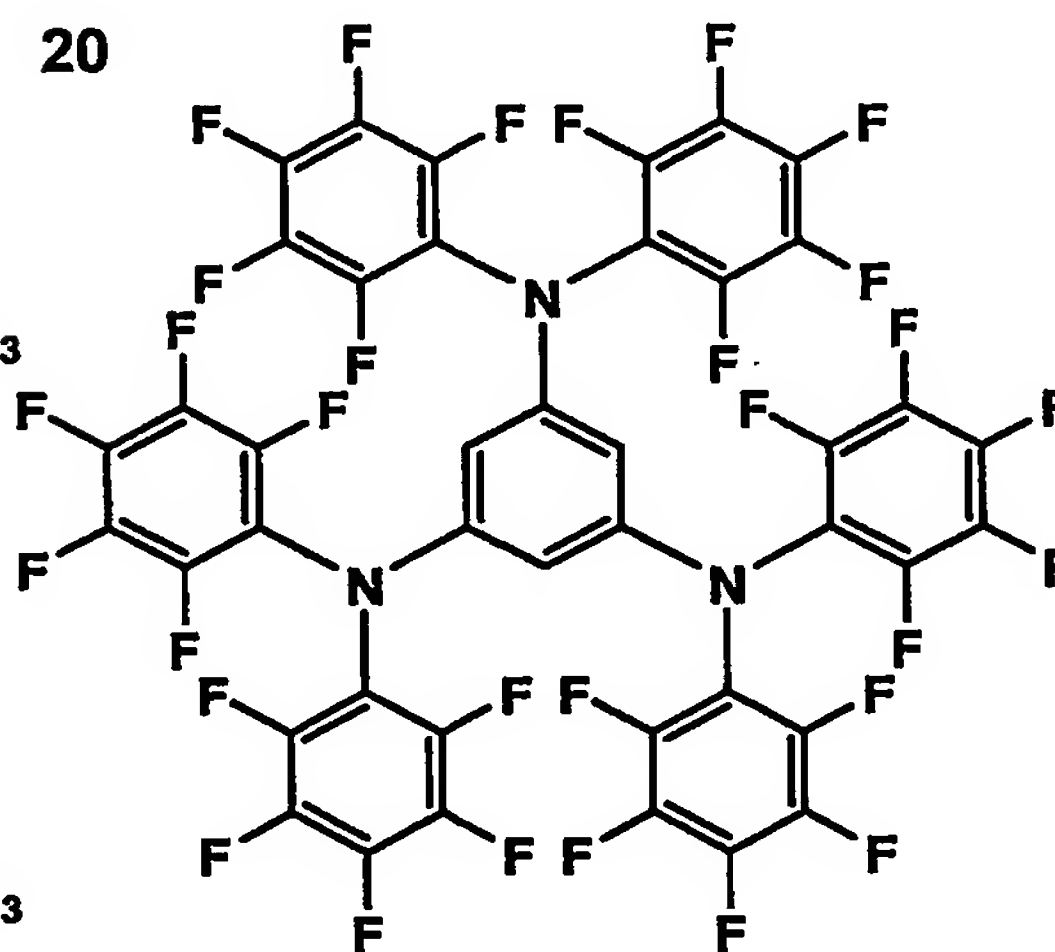
18



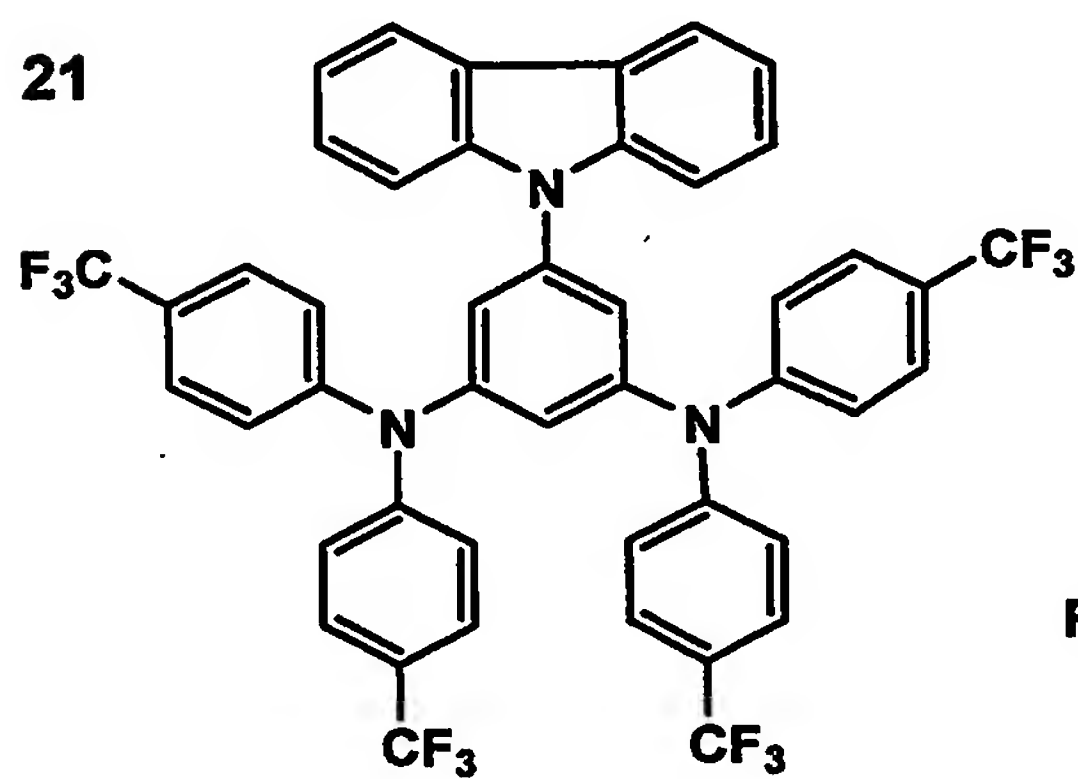
19



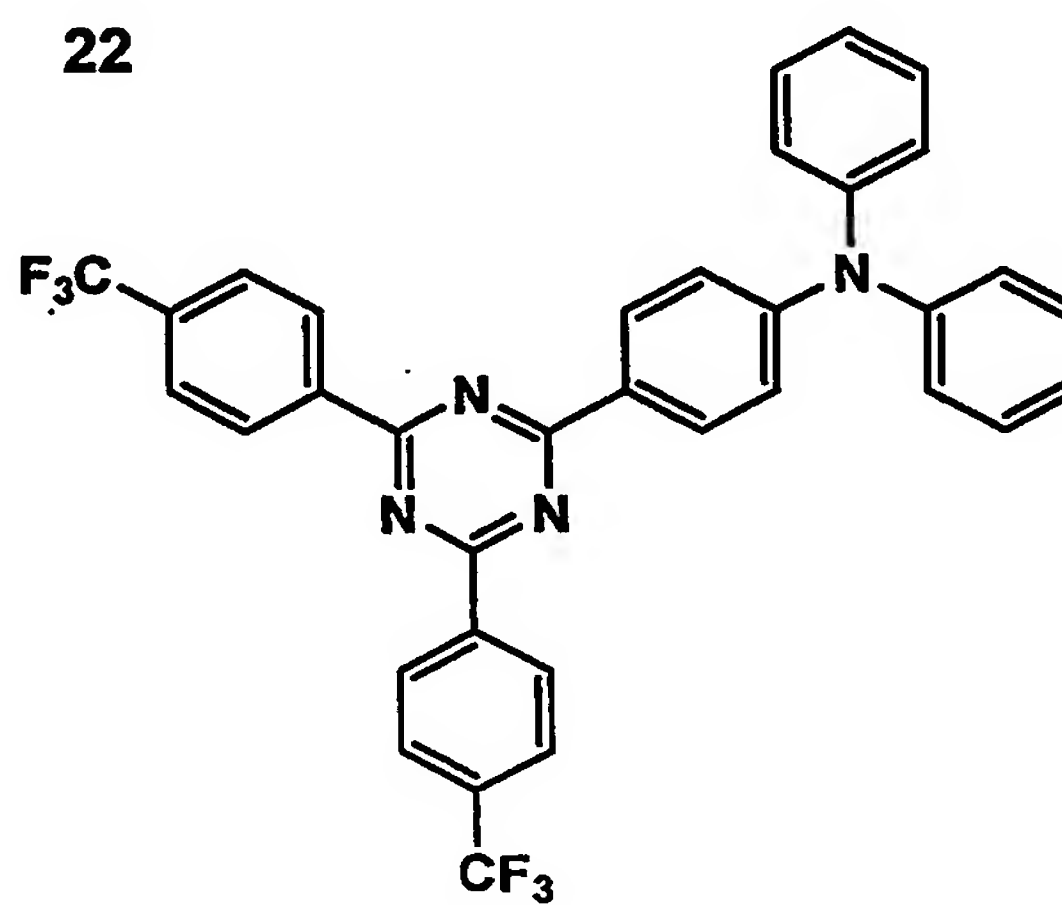
20



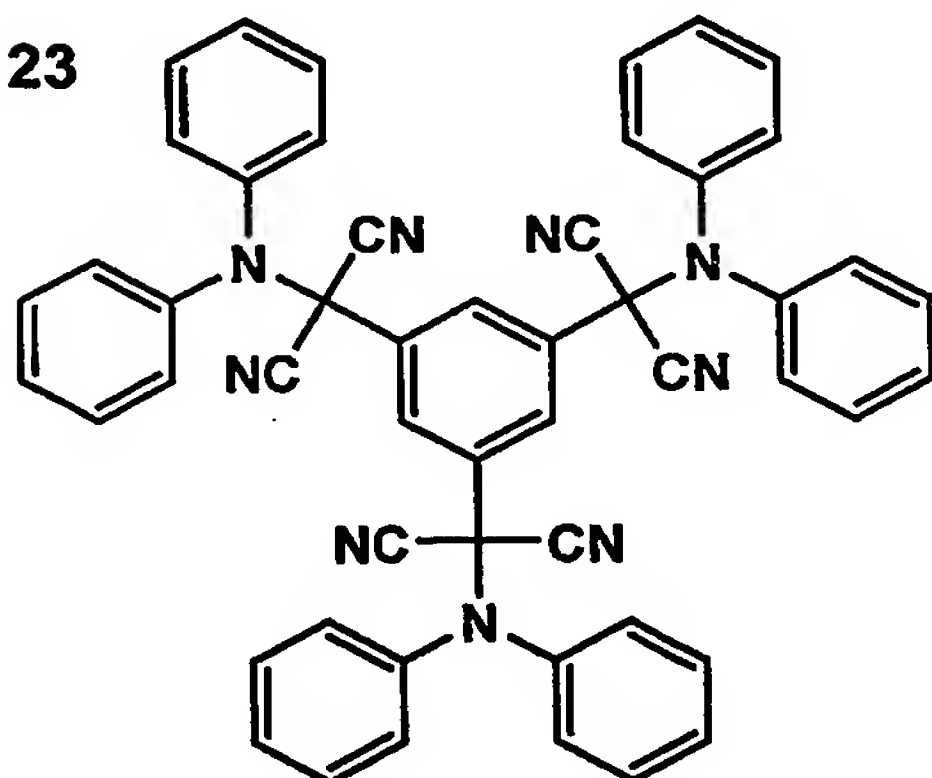
21



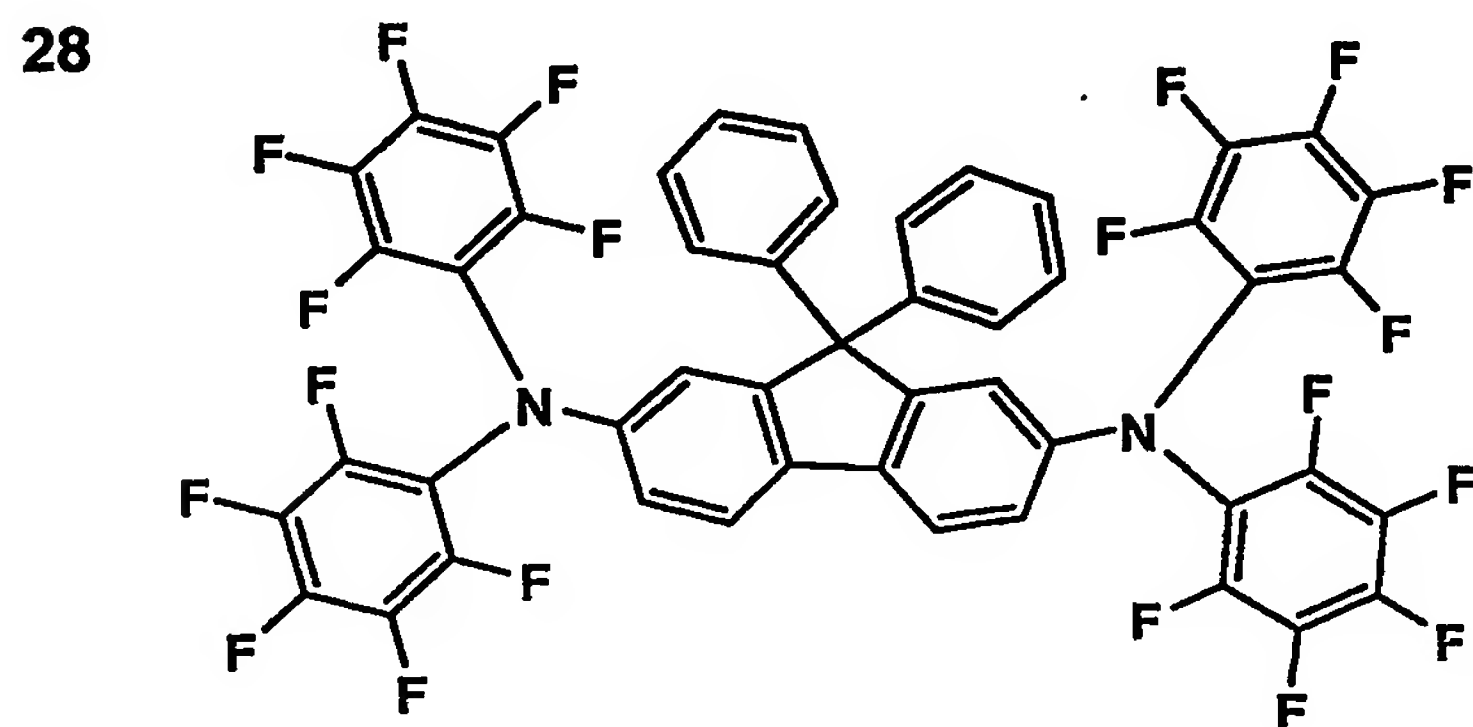
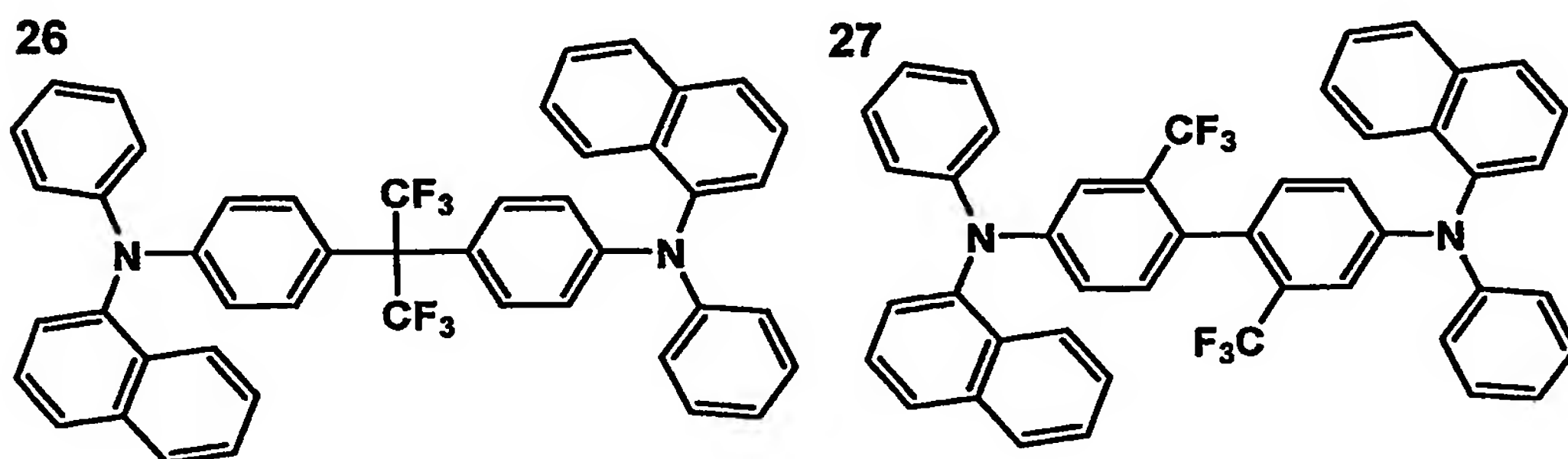
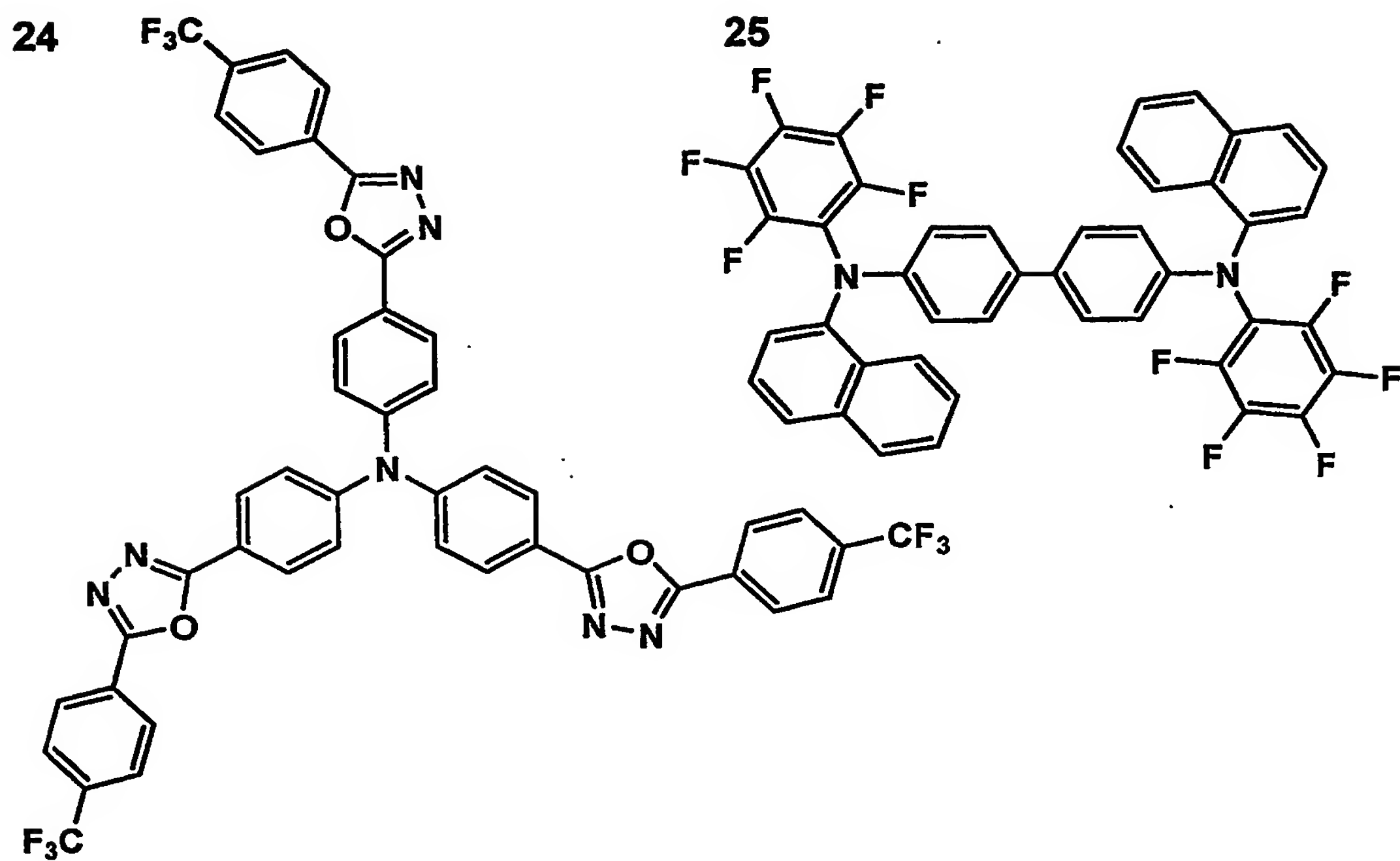
22



23

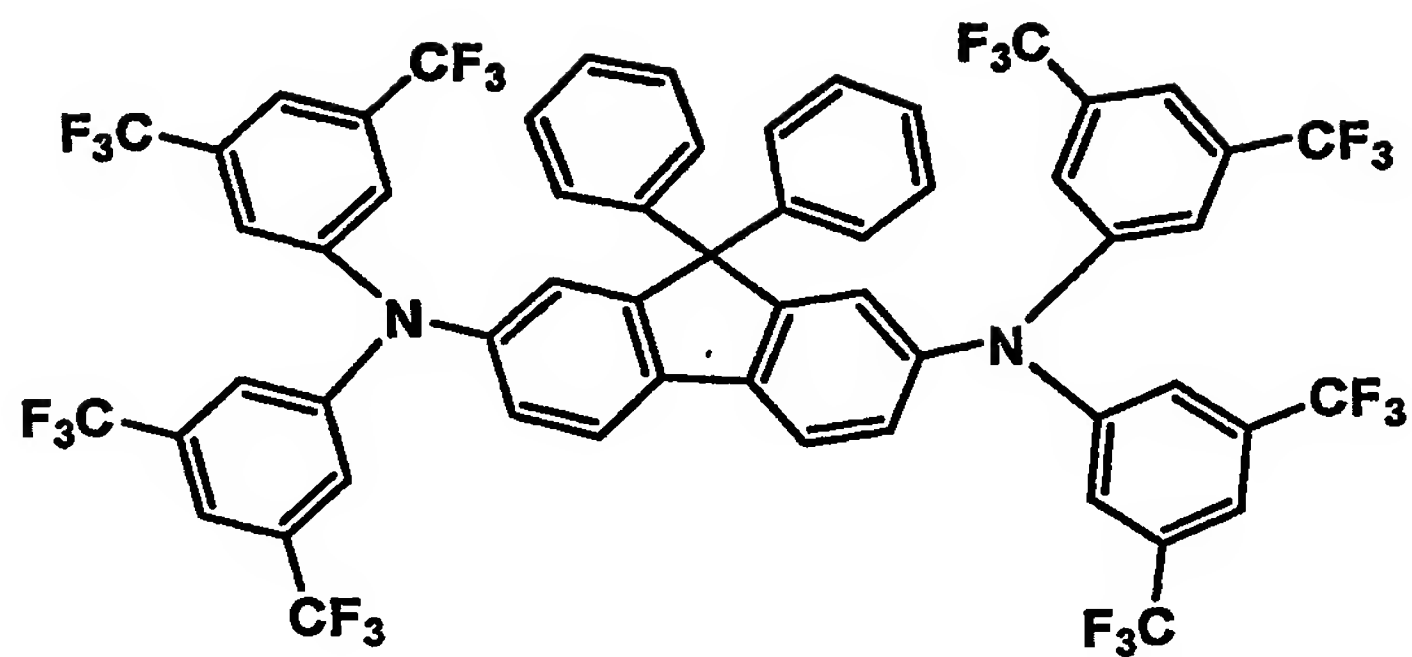


24

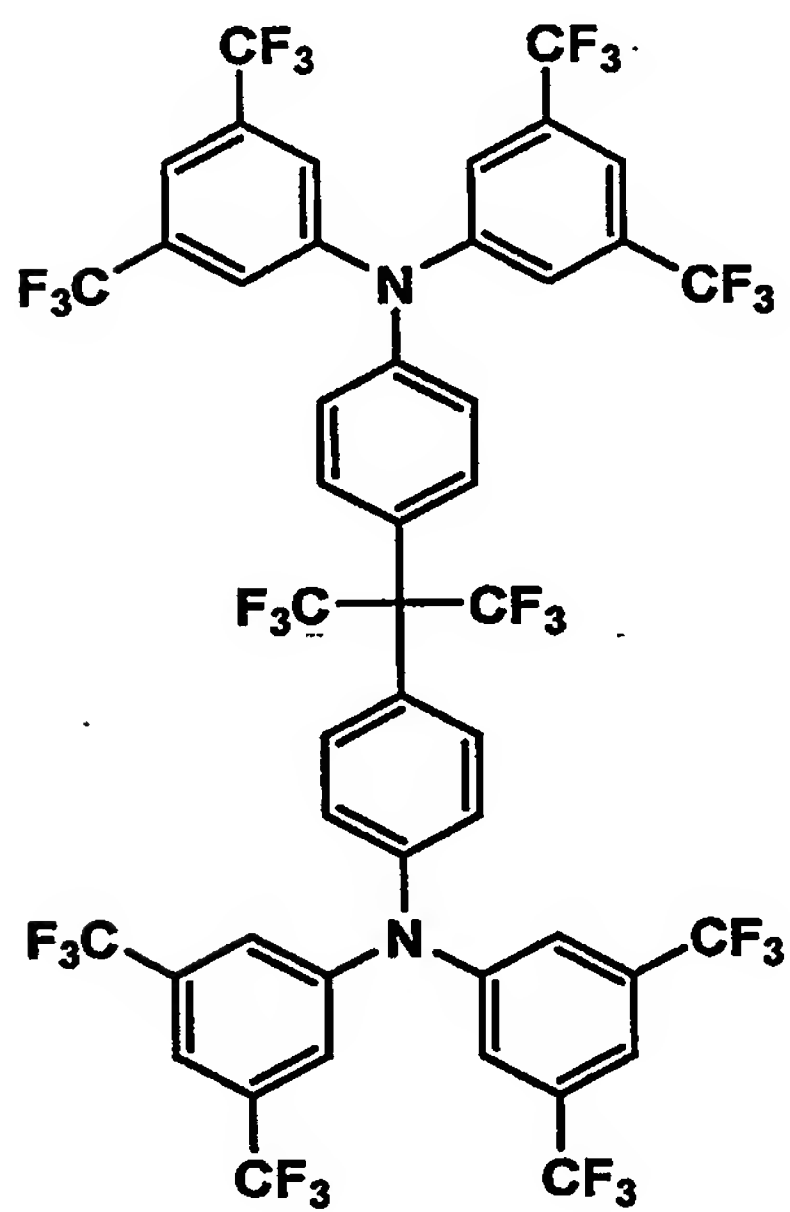


25

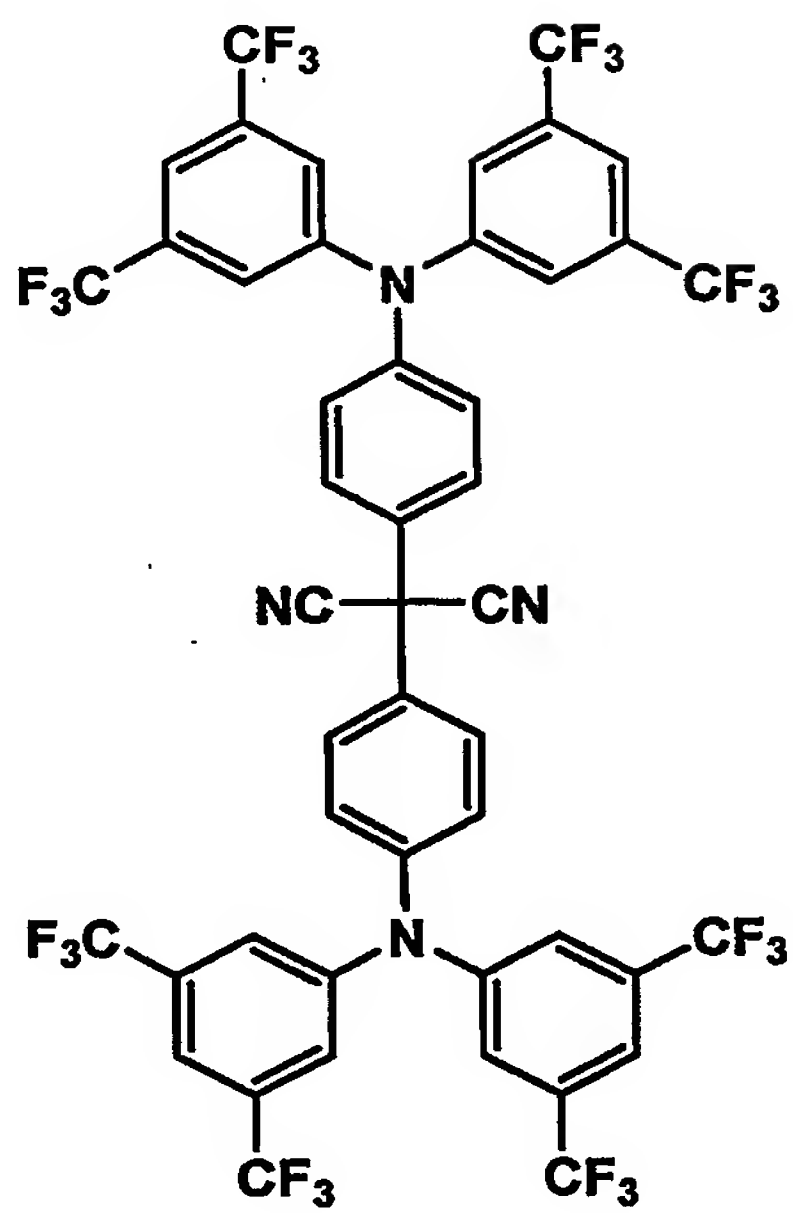
29



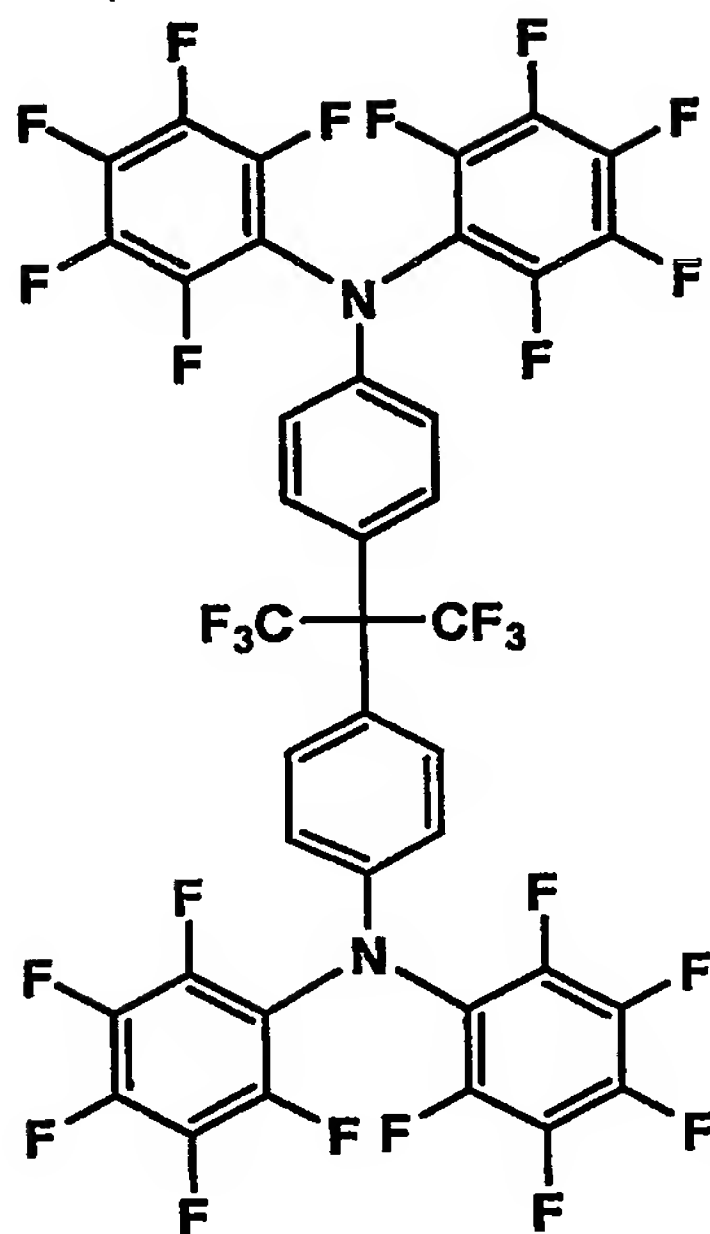
30



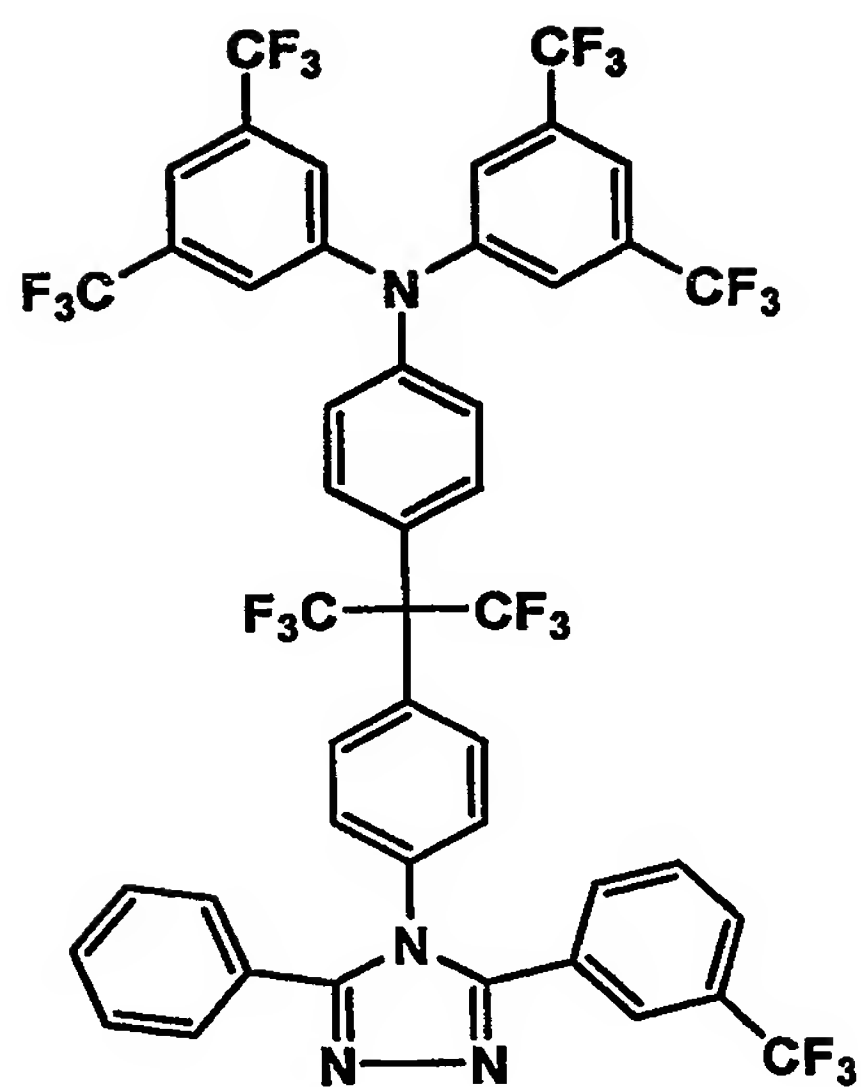
31



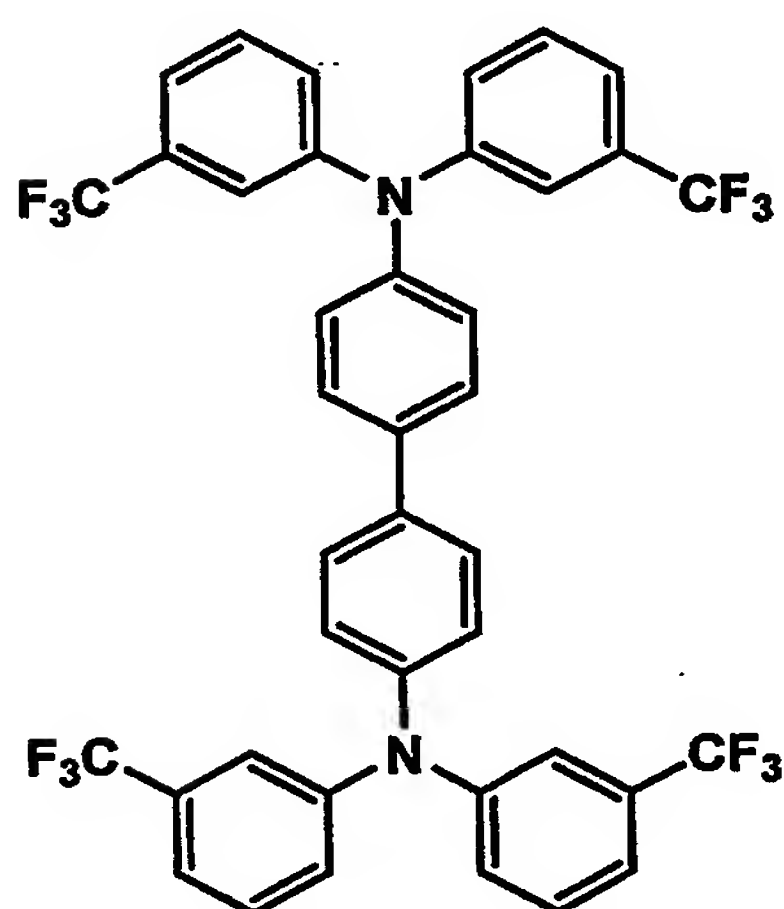
32



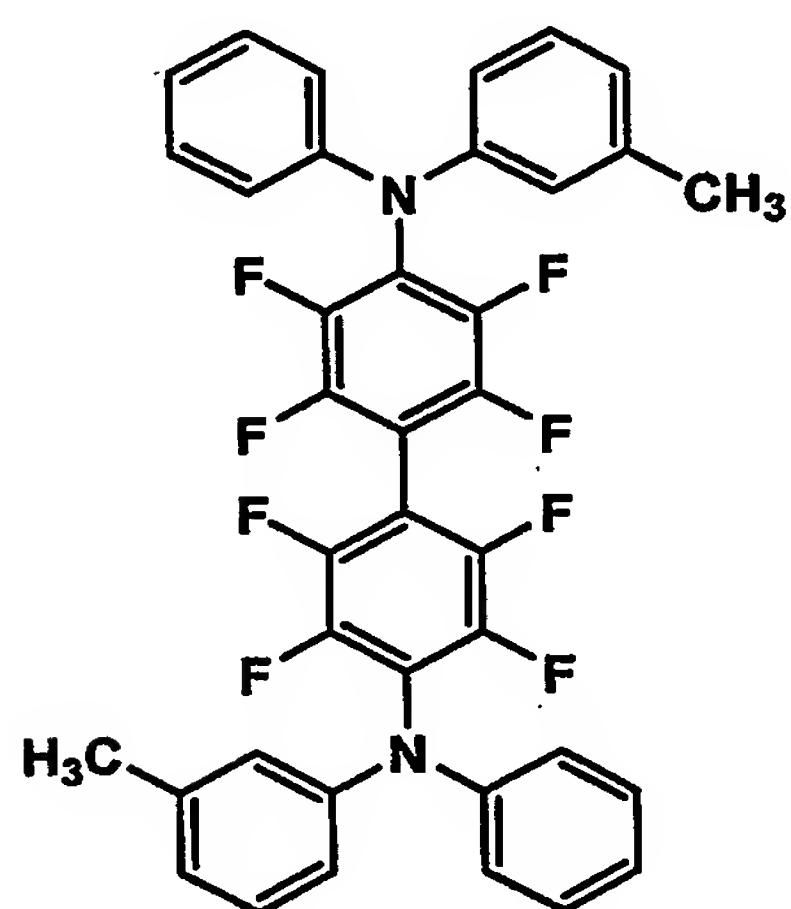
33



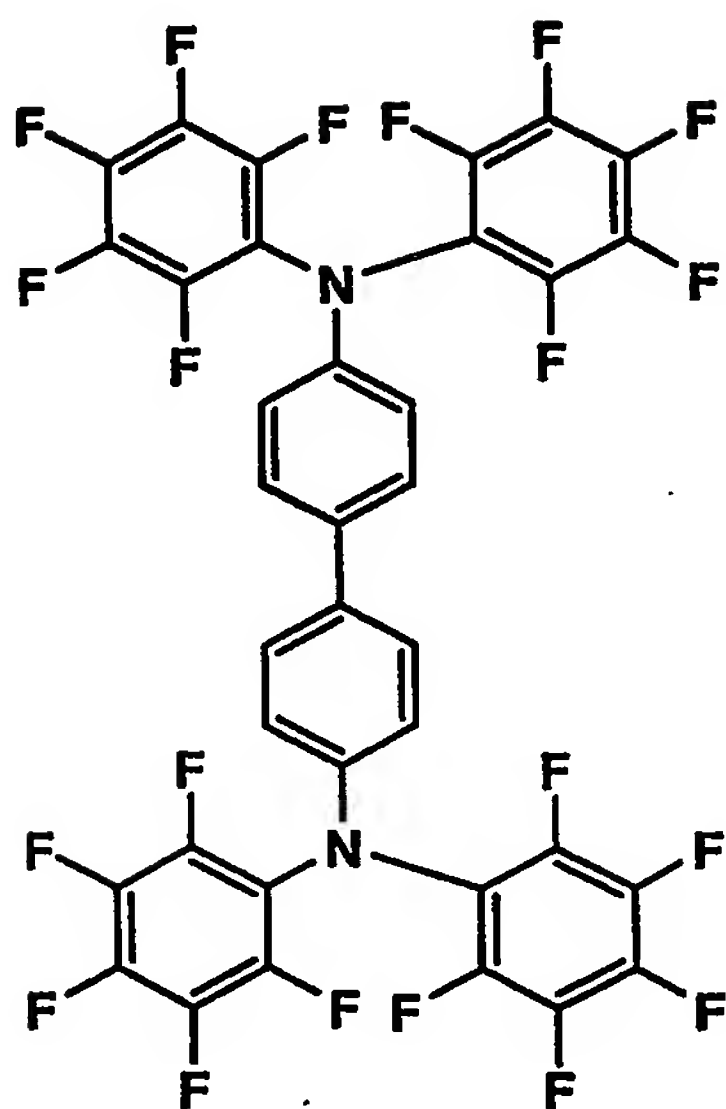
34



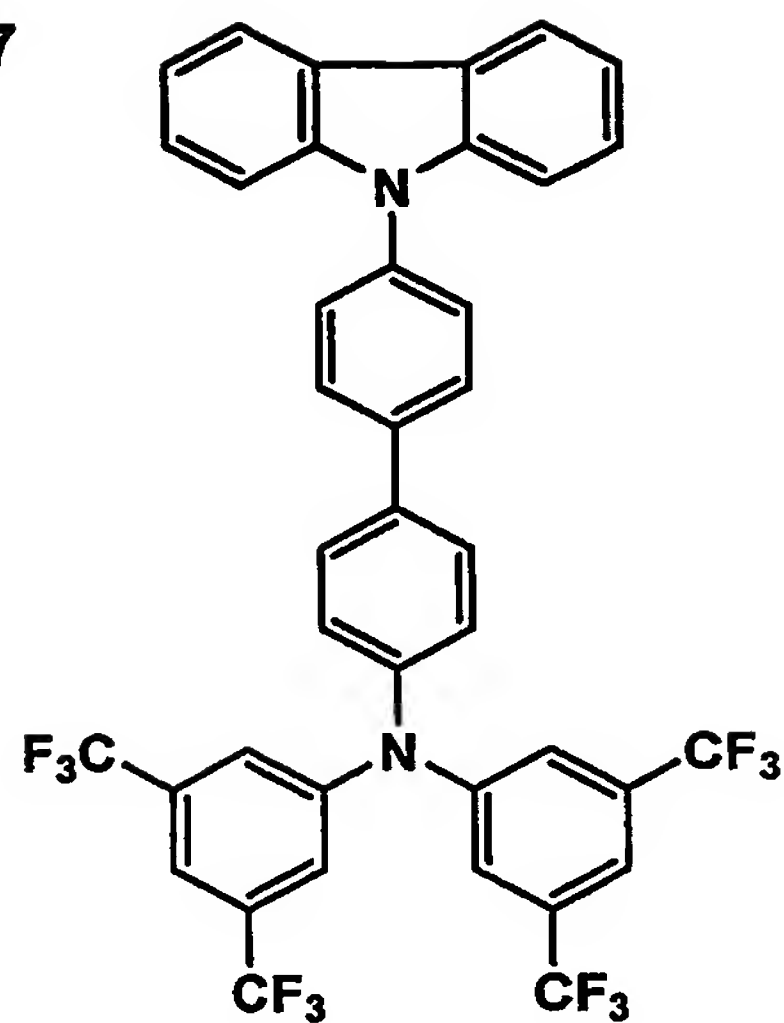
35



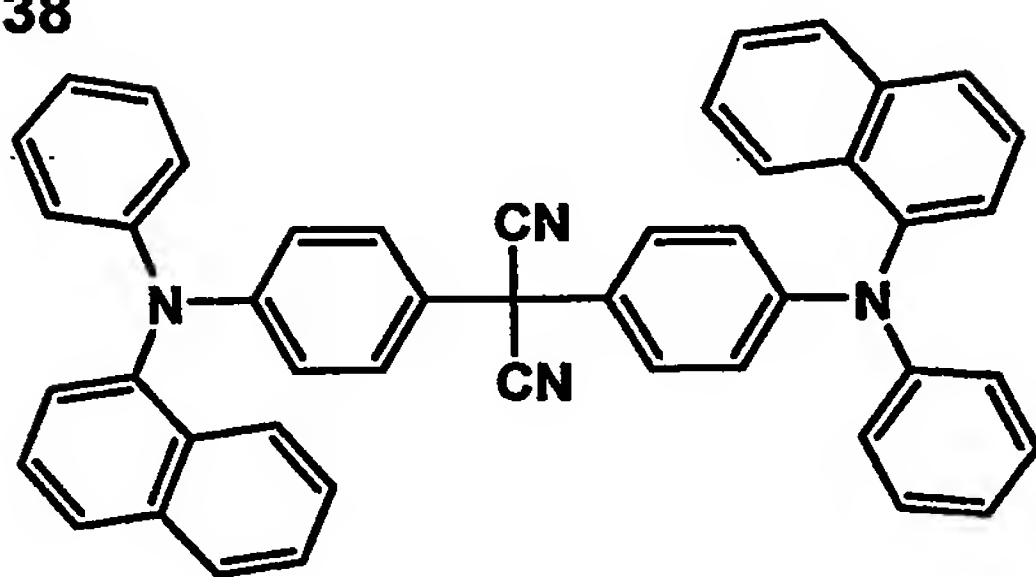
36



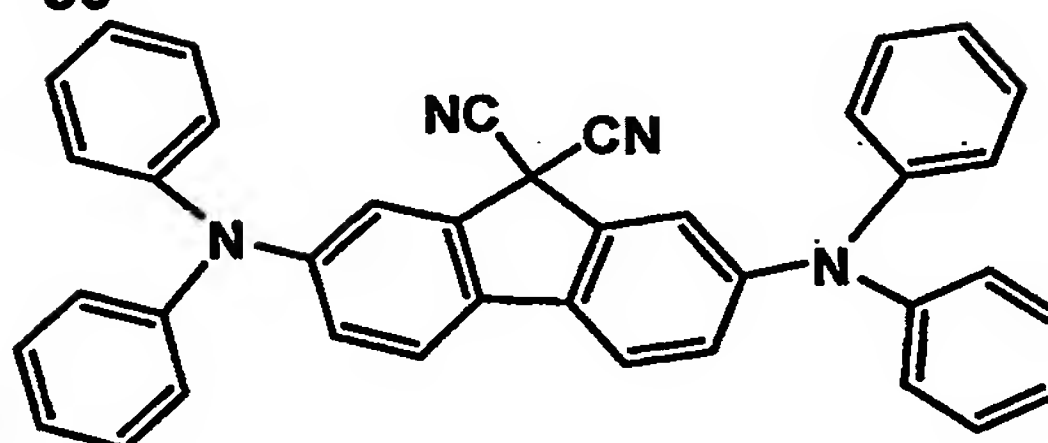
37



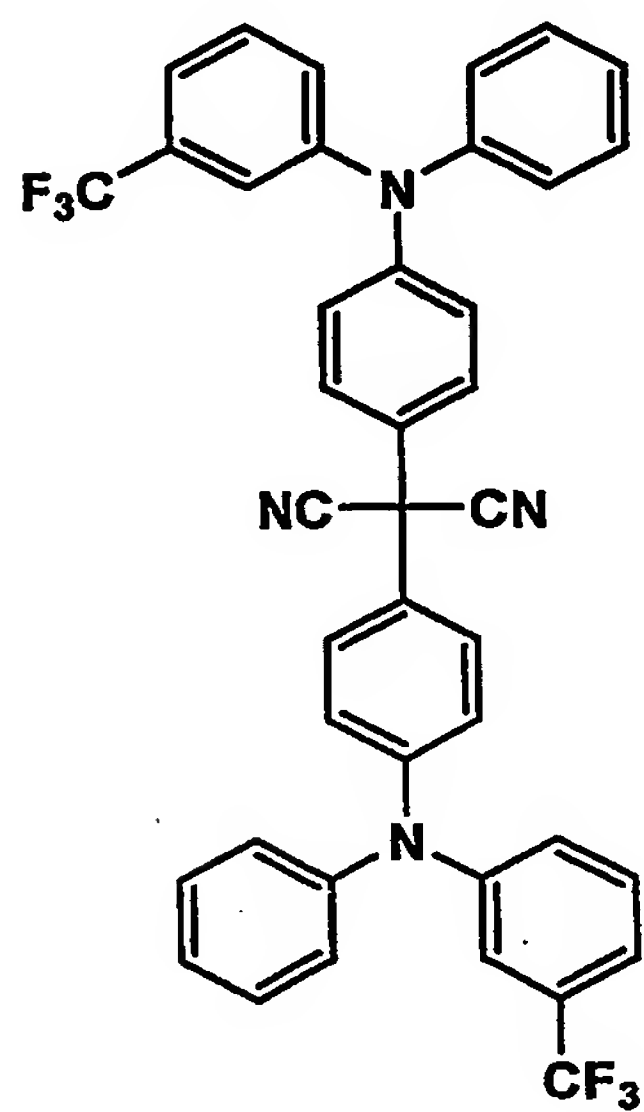
38



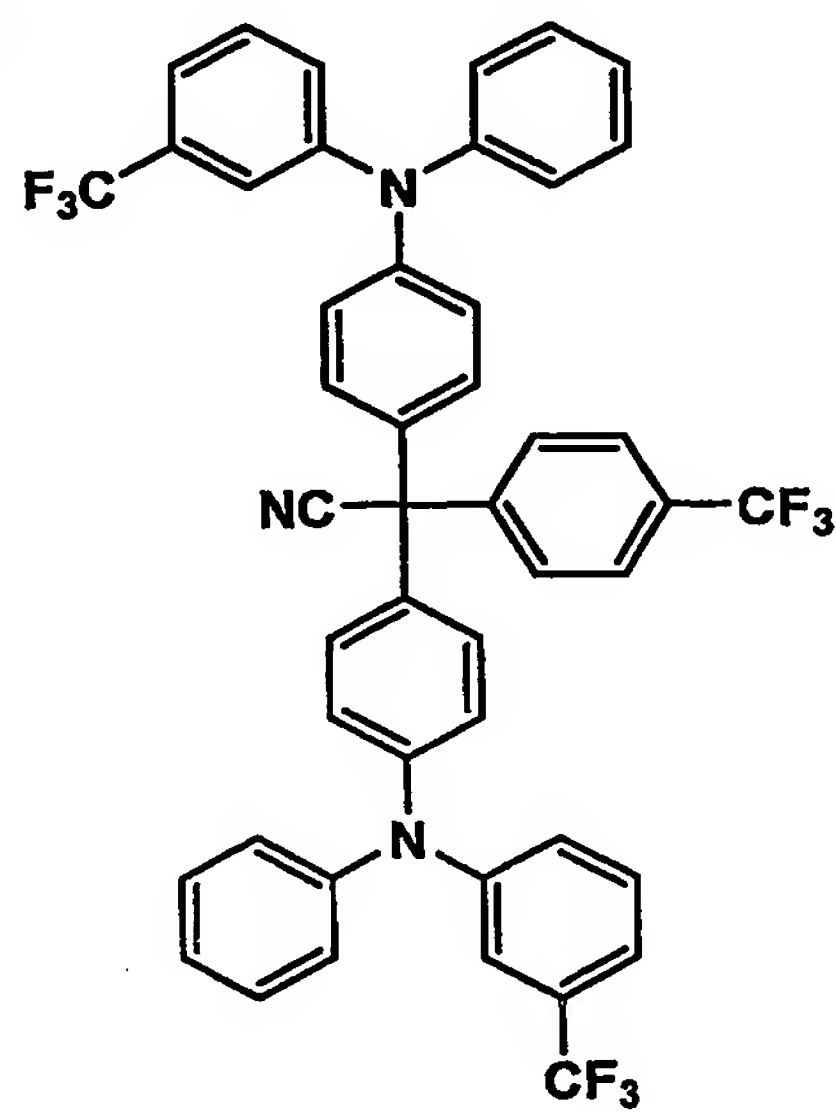
39



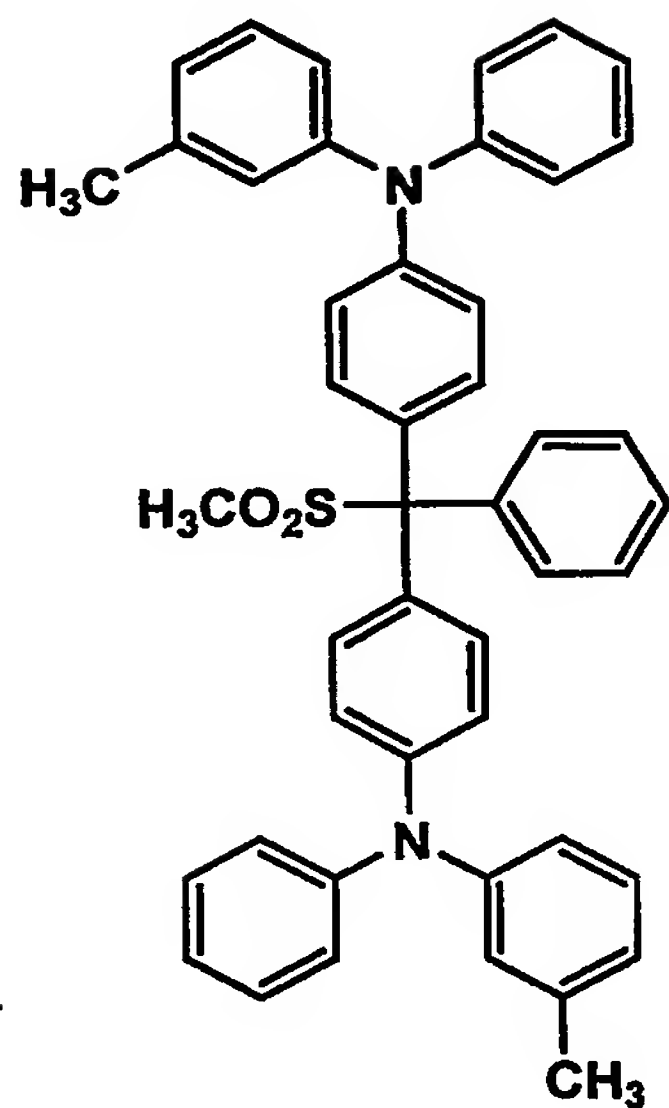
40



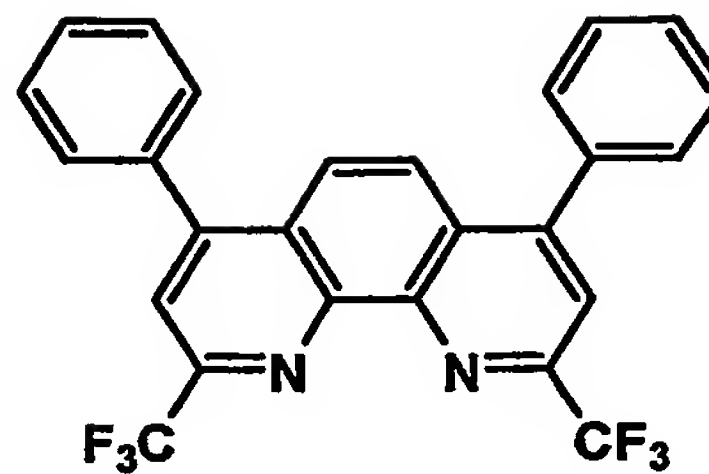
41



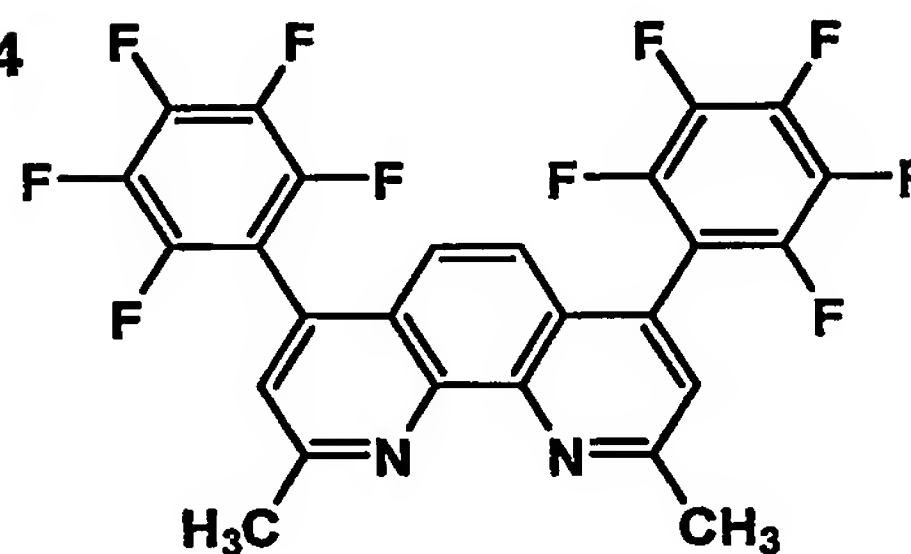
42



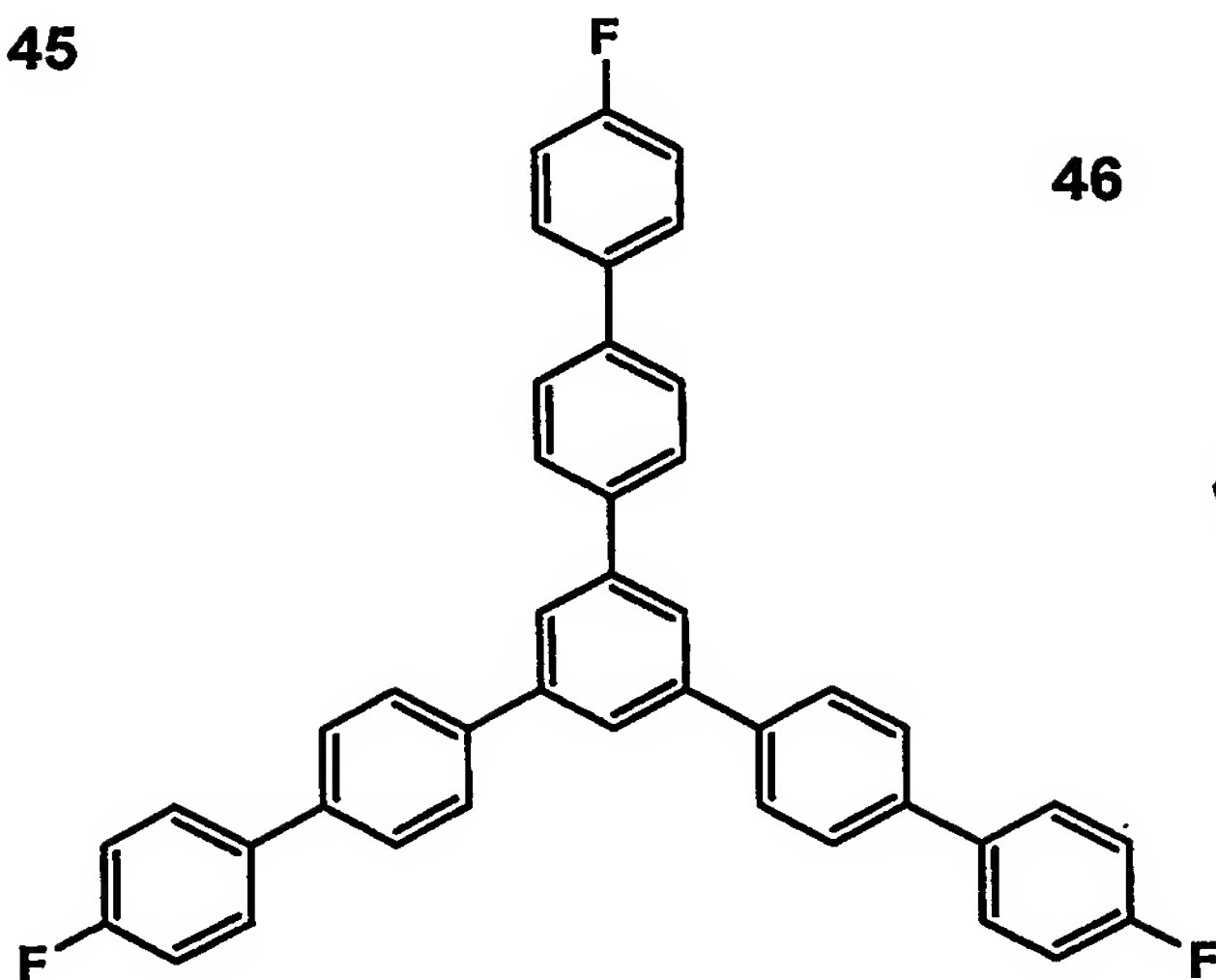
43



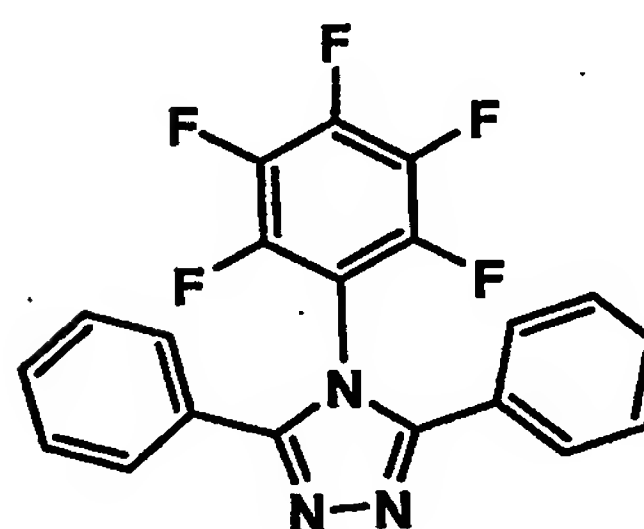
44



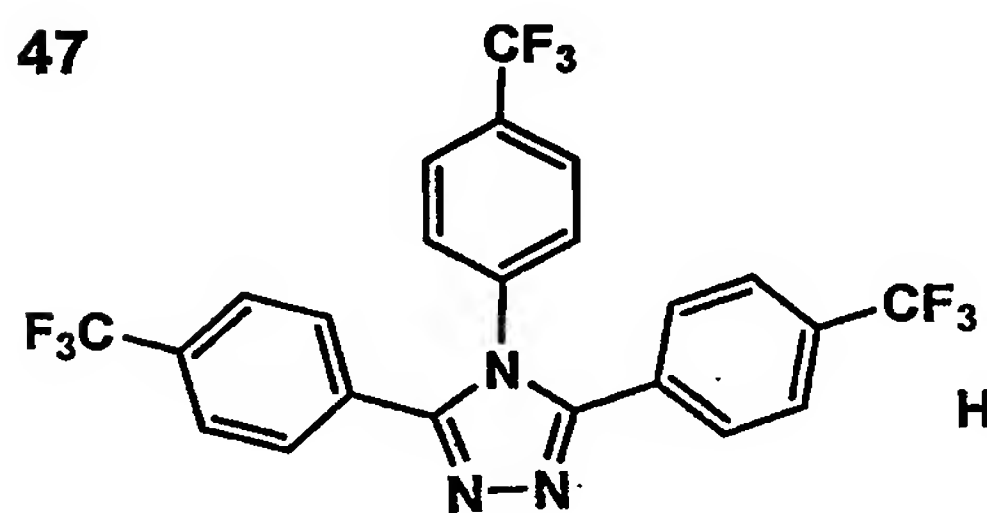
45



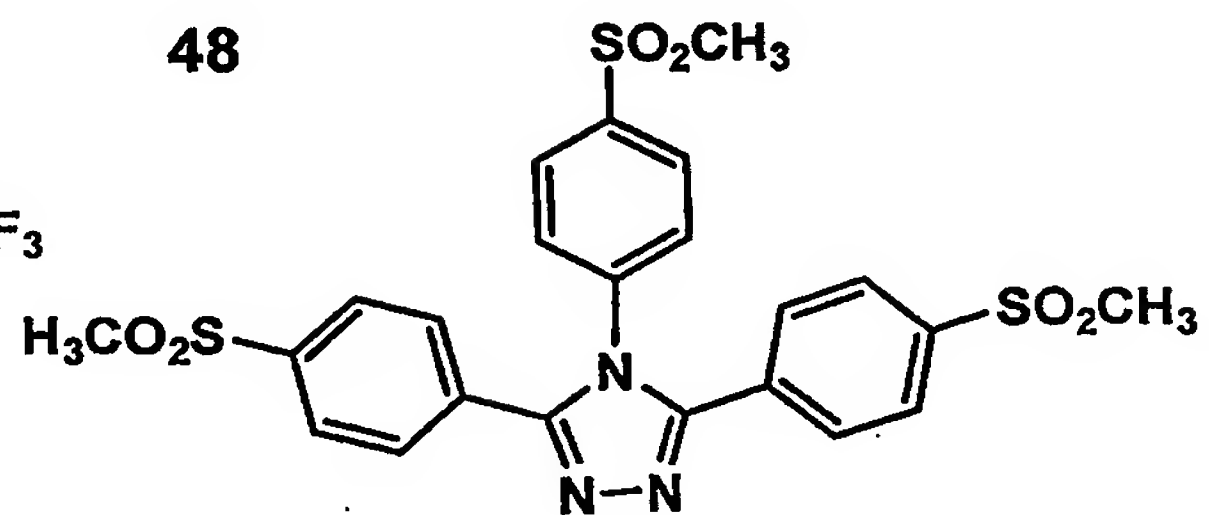
46



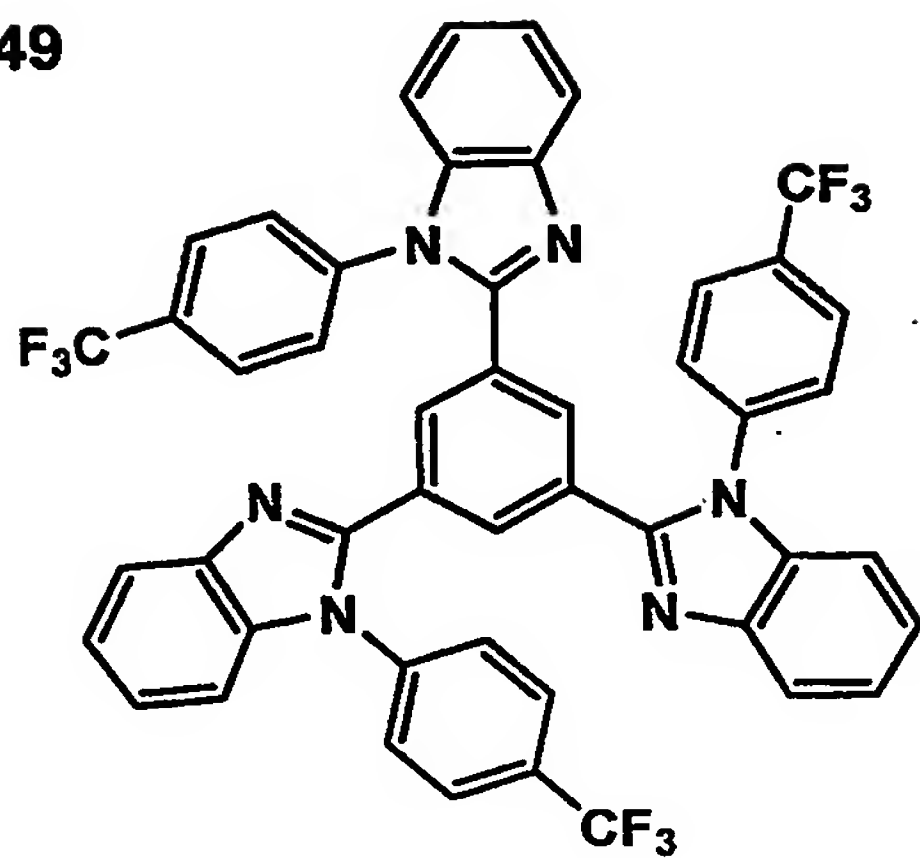
47



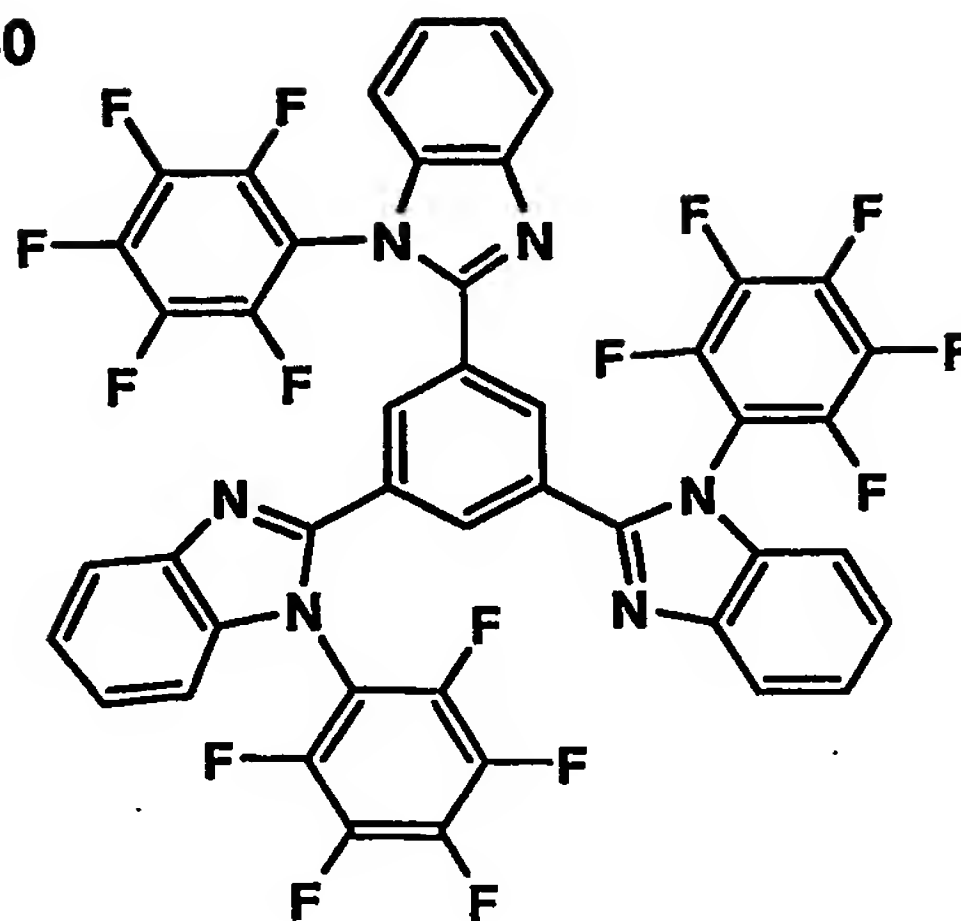
48



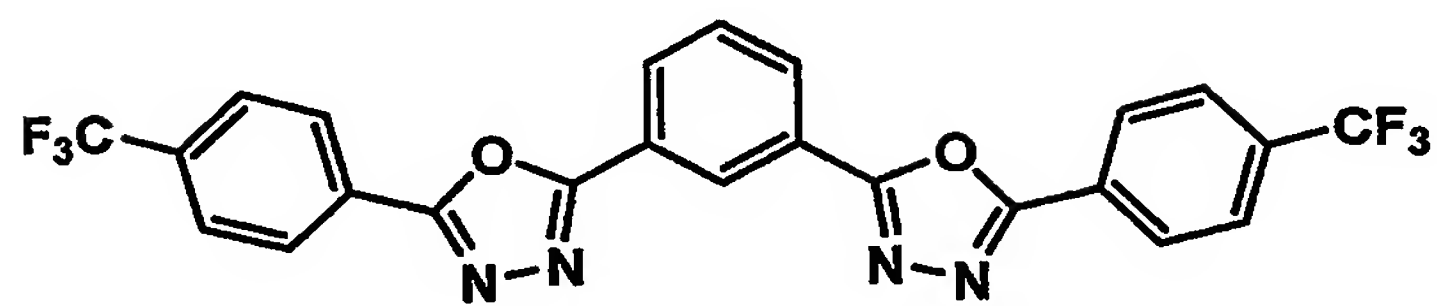
49



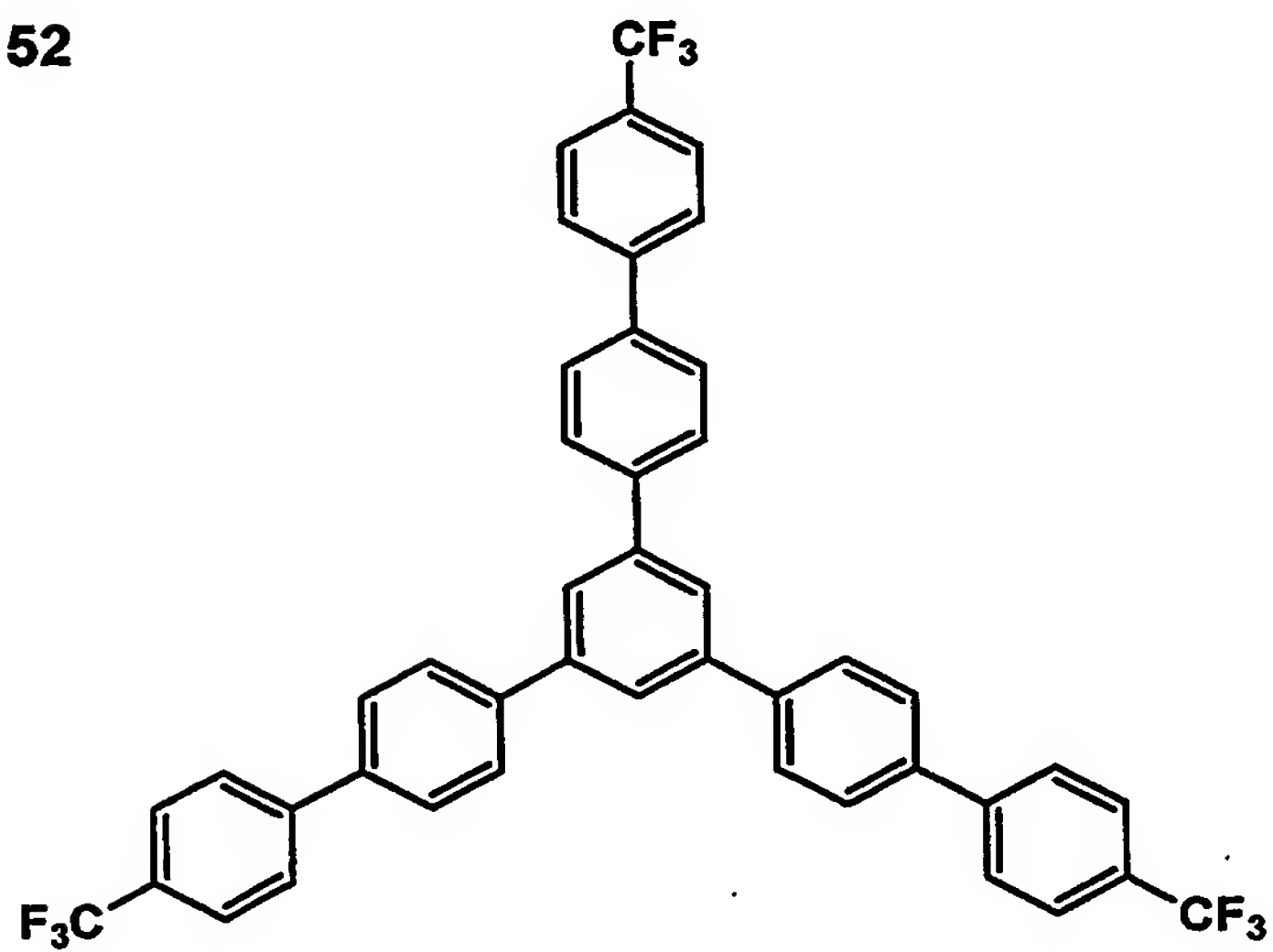
50



51

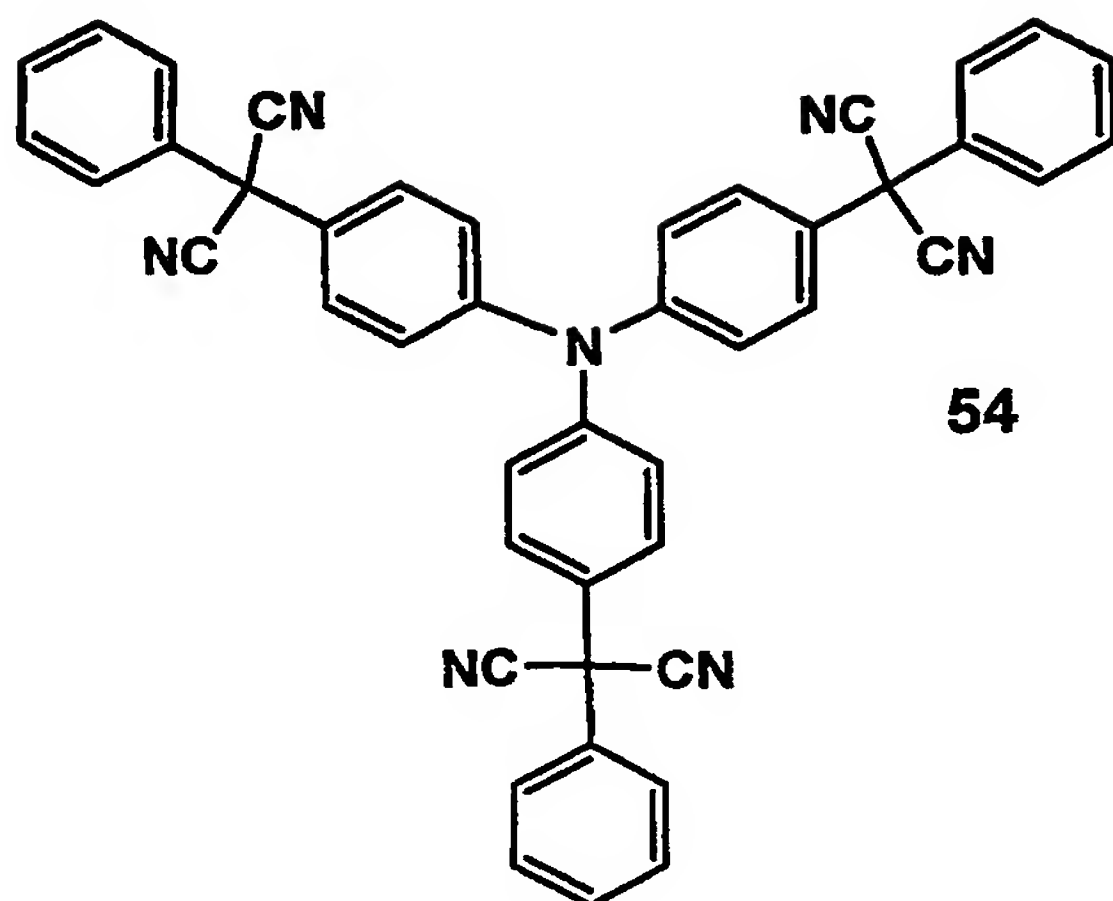


52

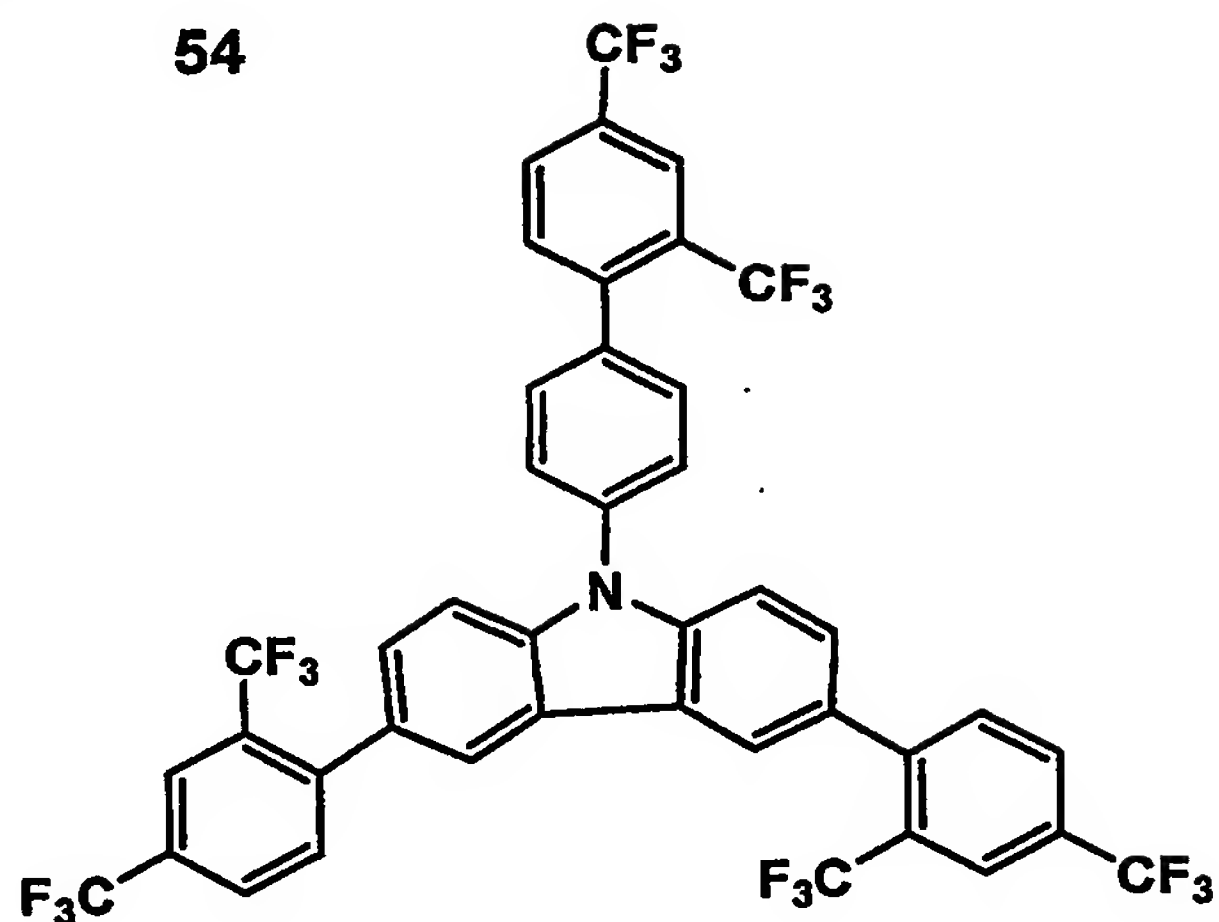


30

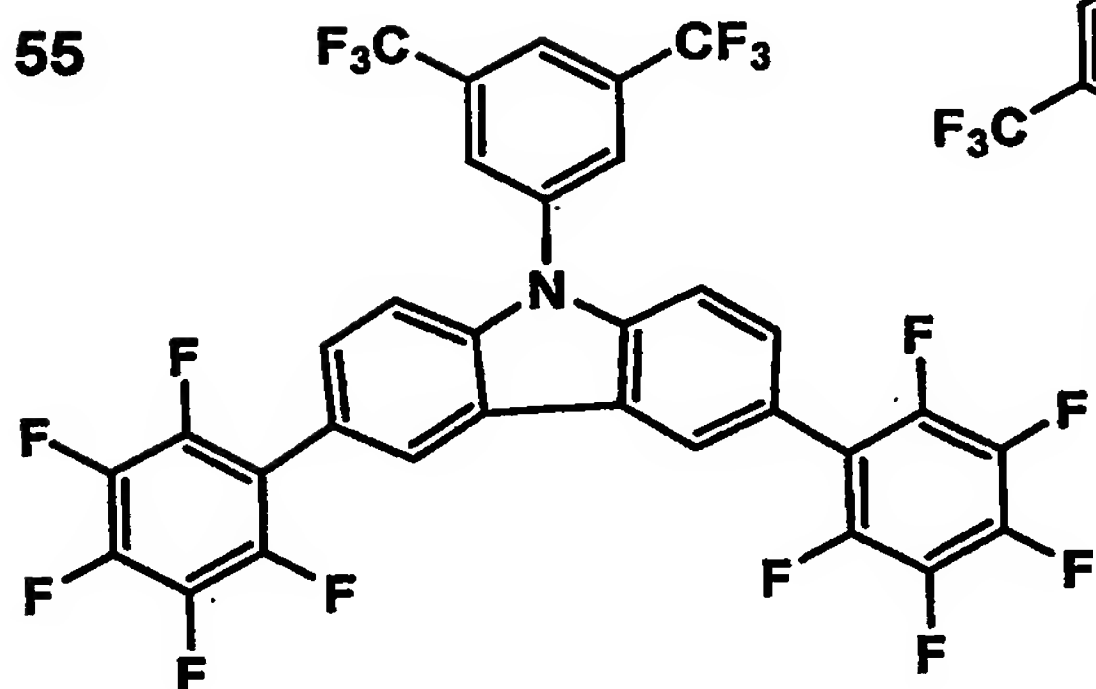
53



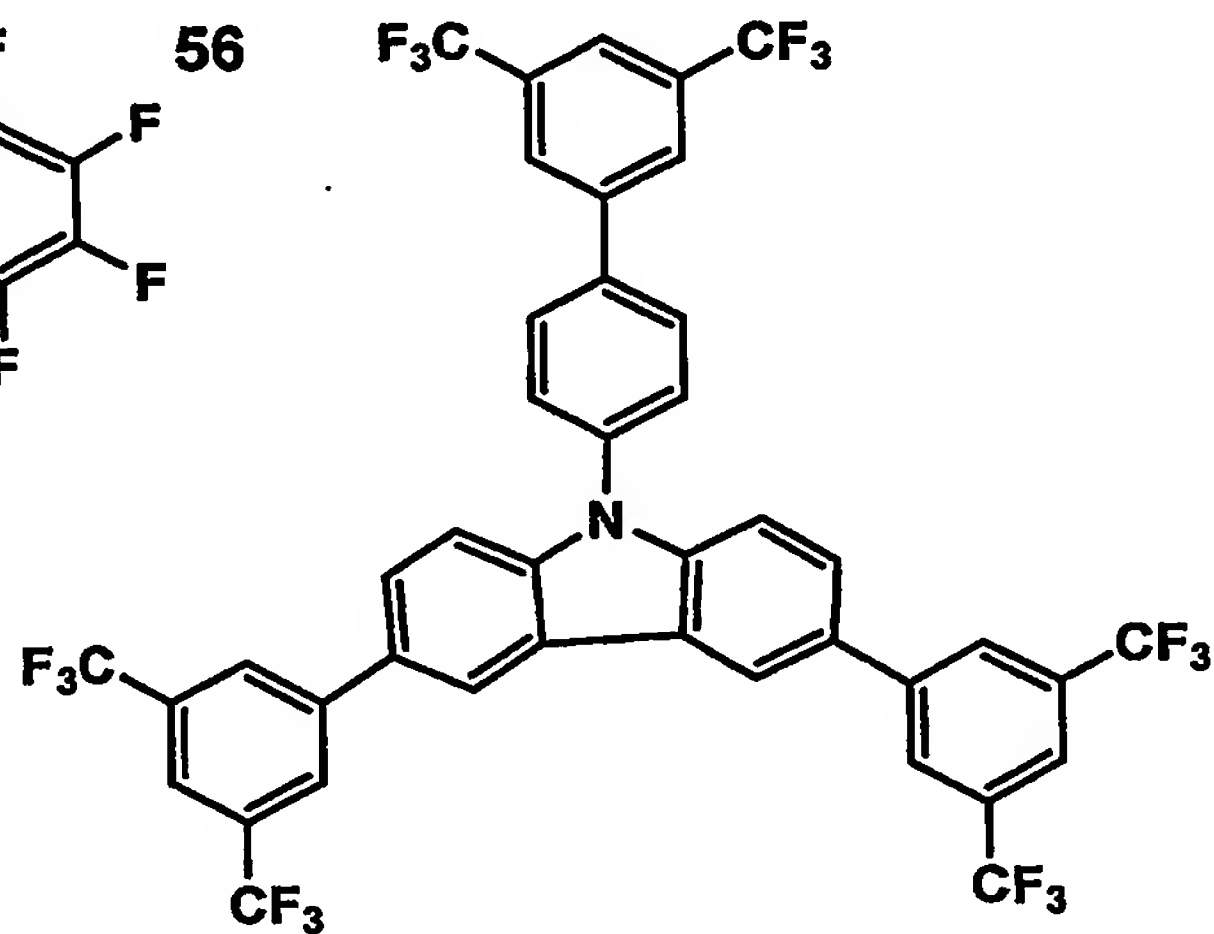
54



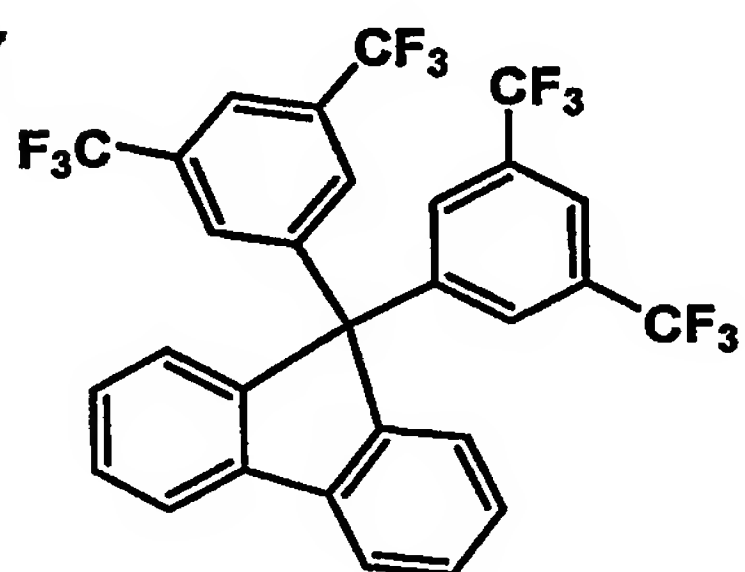
55



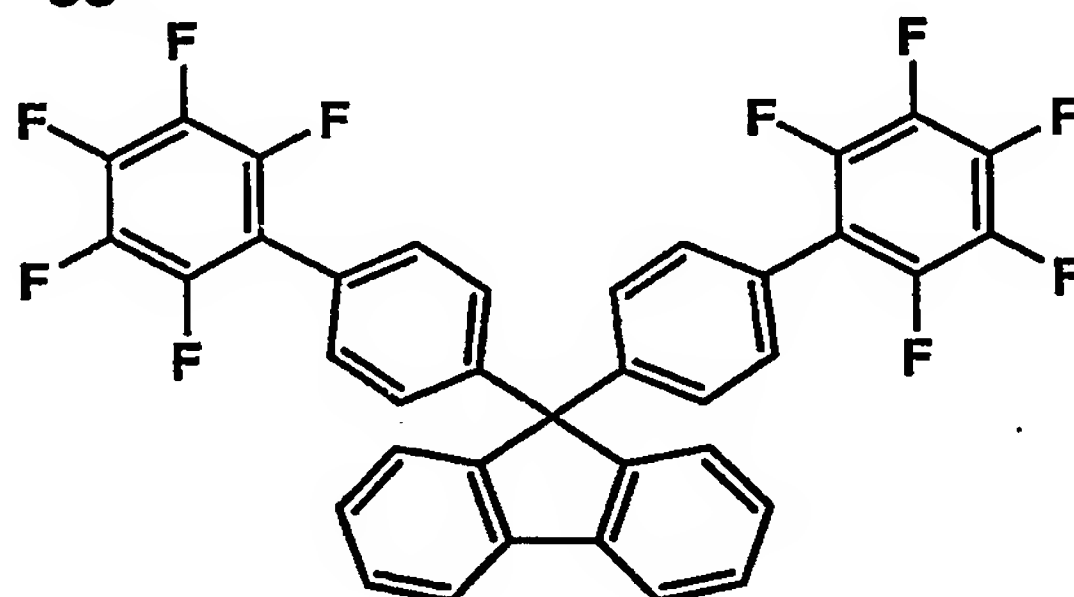
56



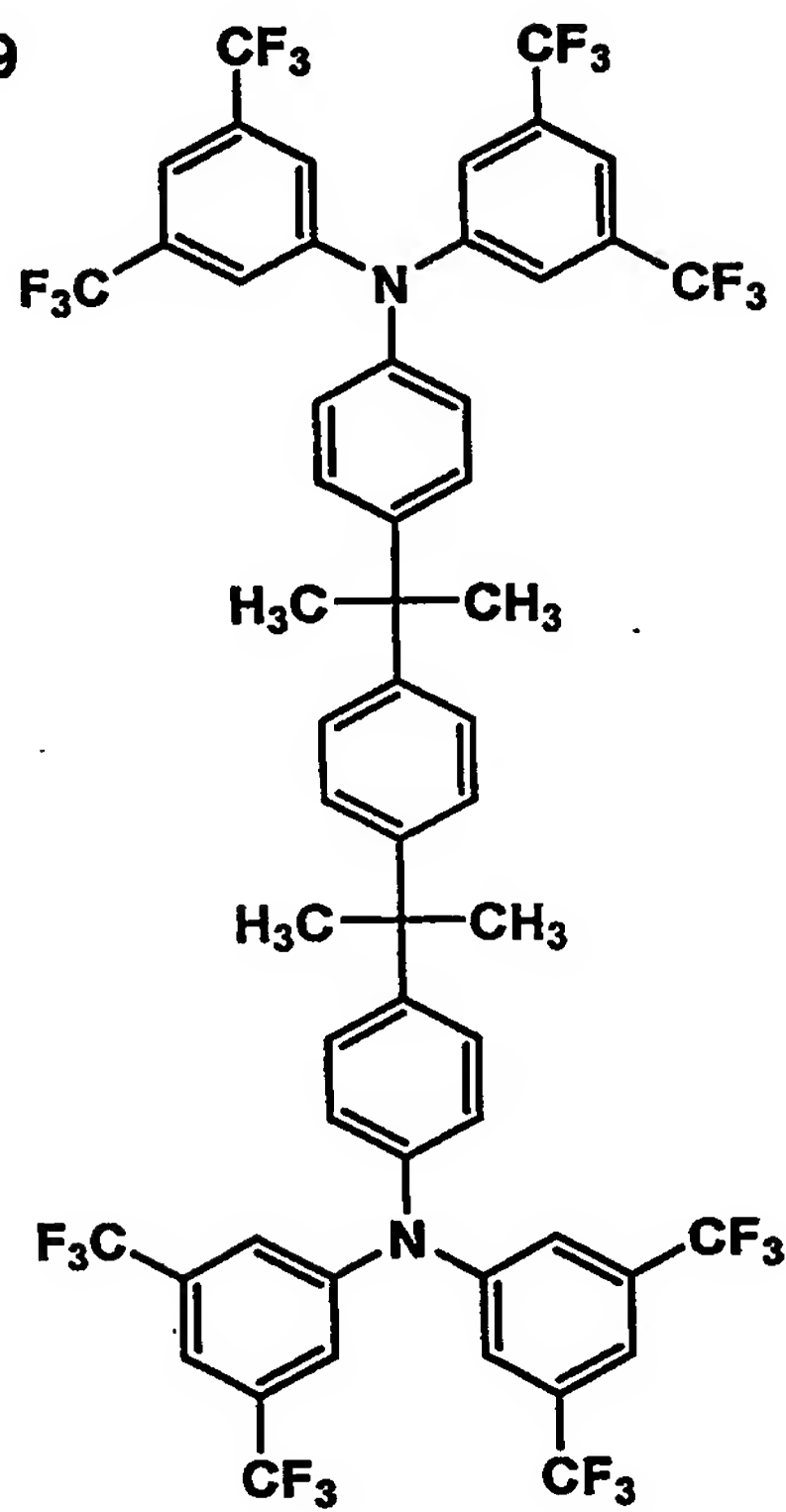
57



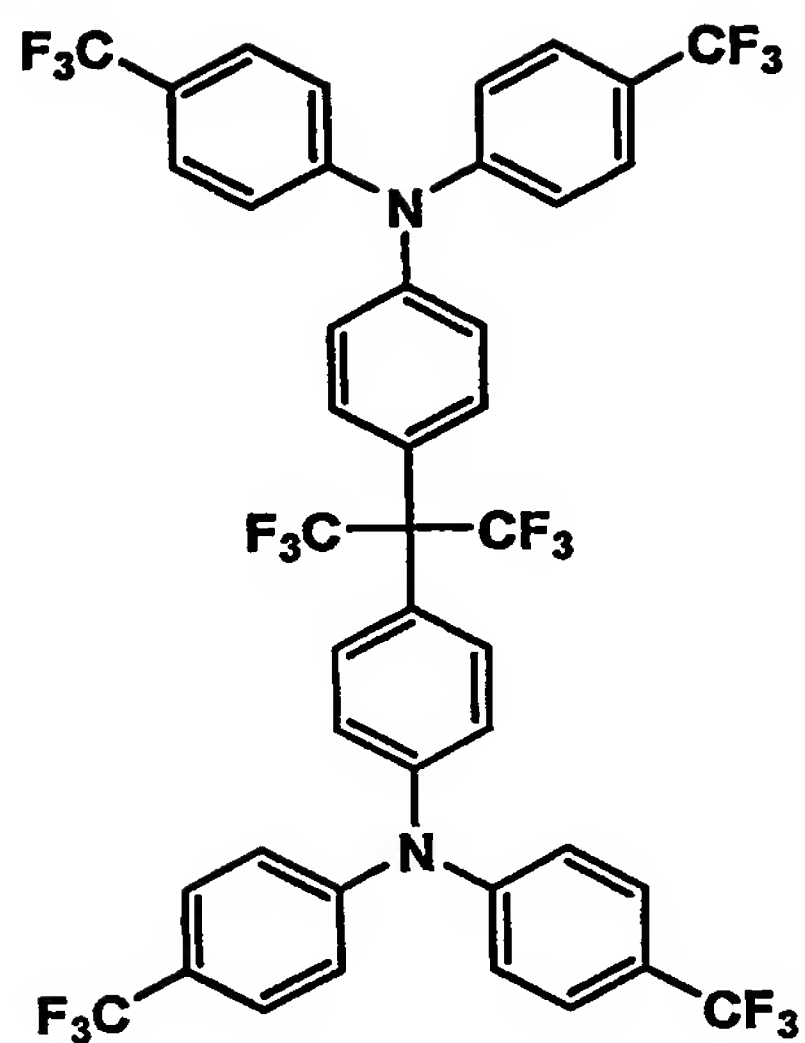
58



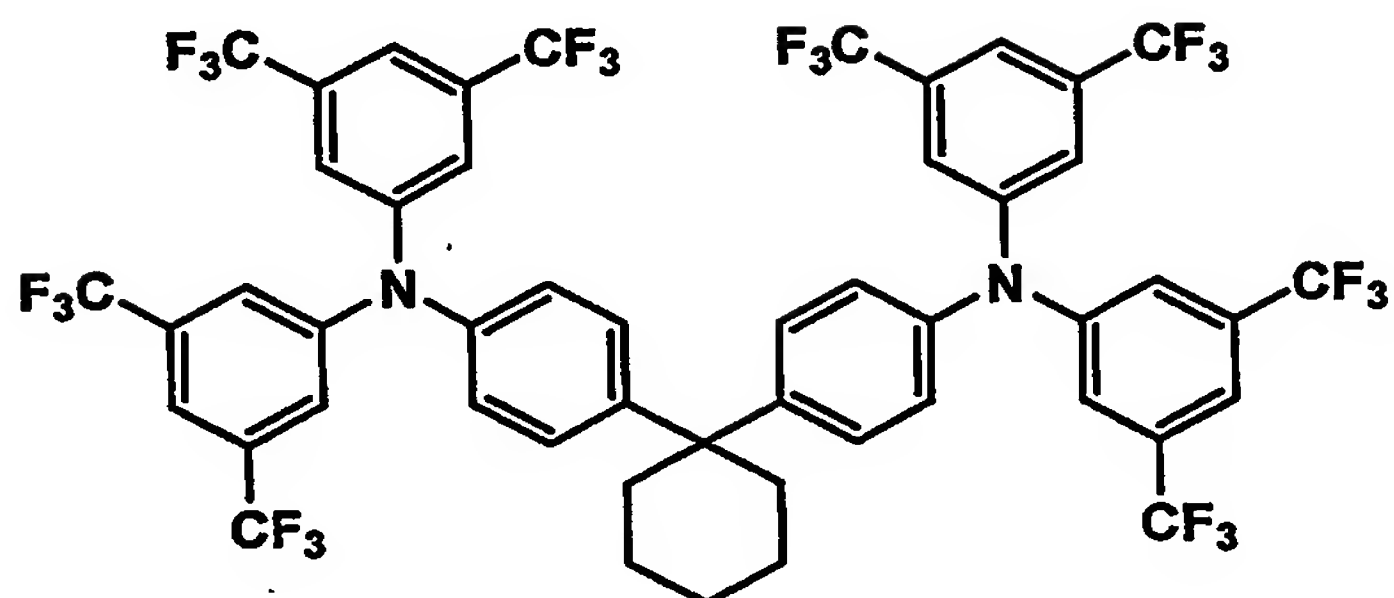
59



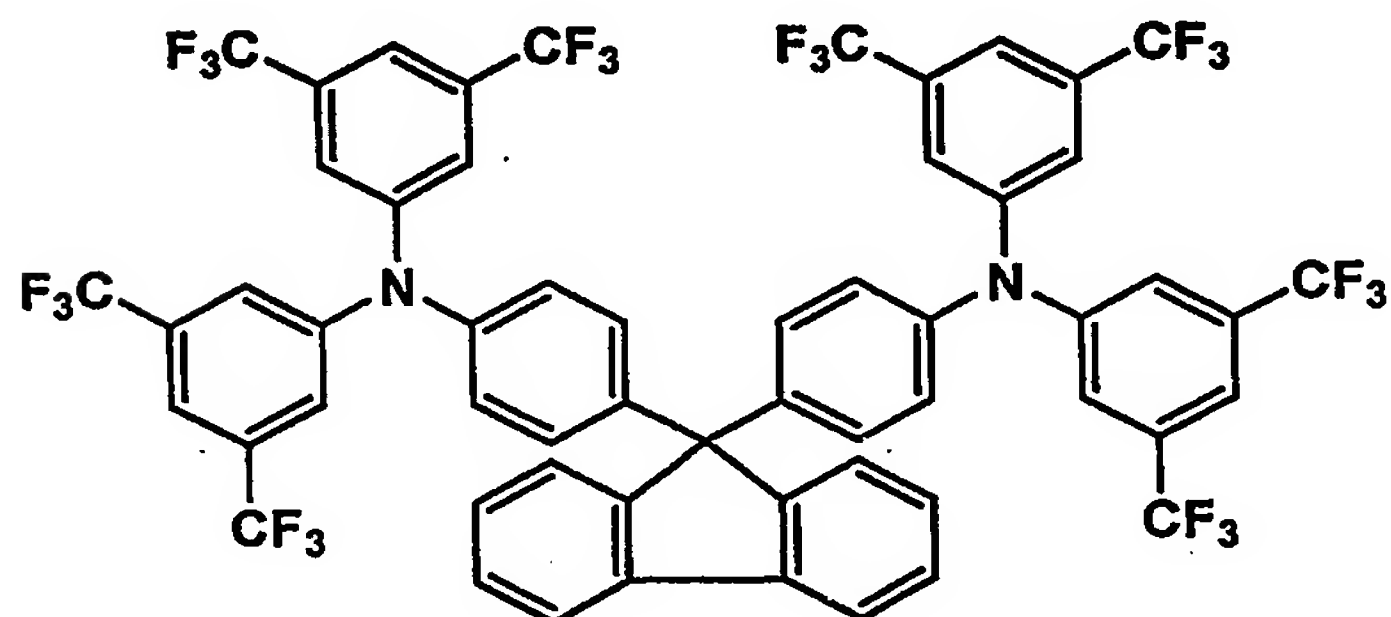
60



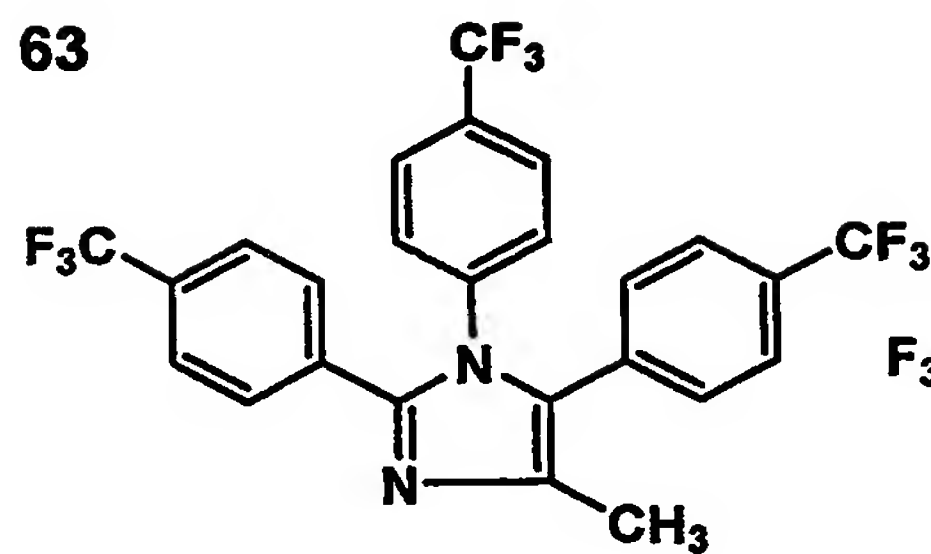
61



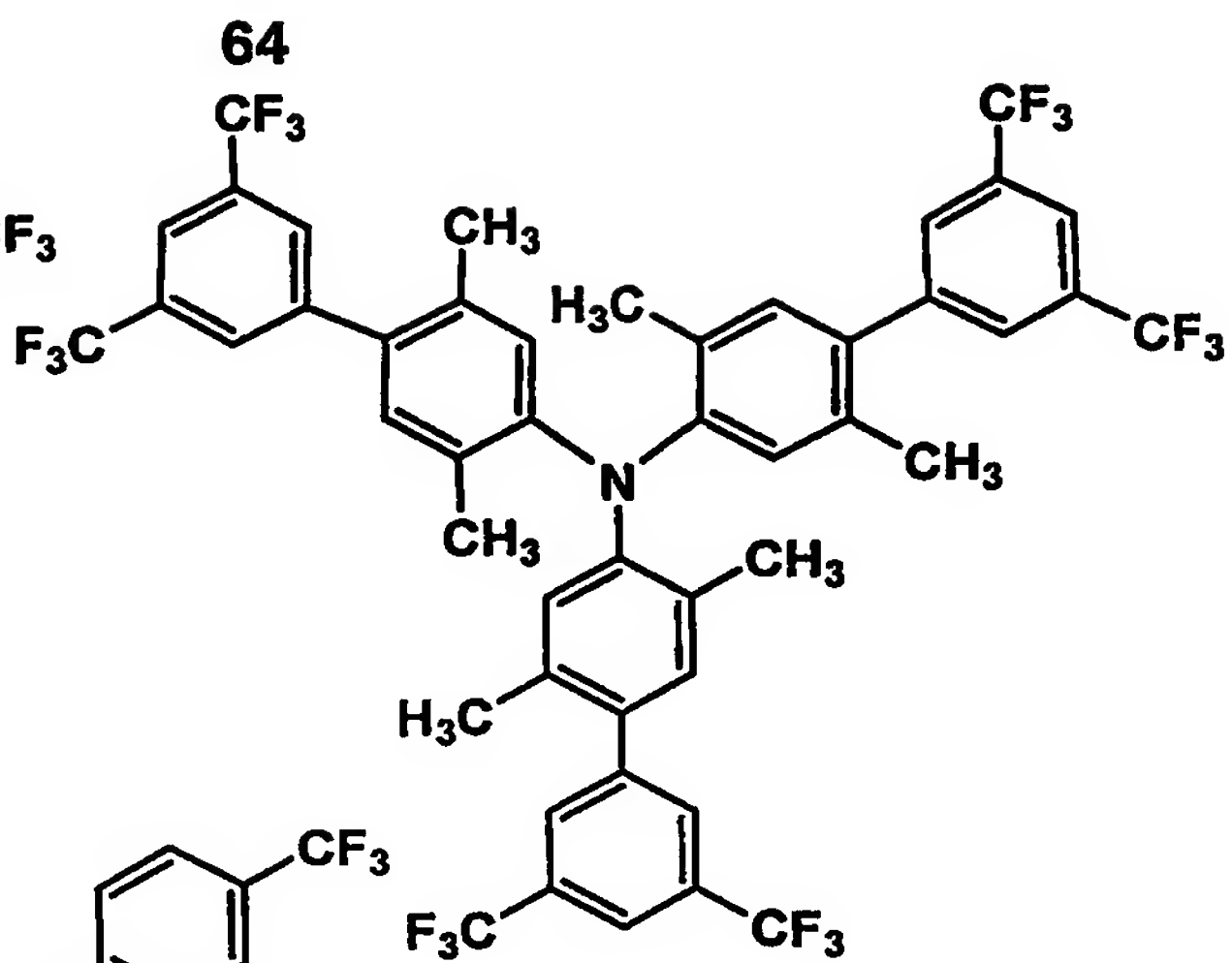
62



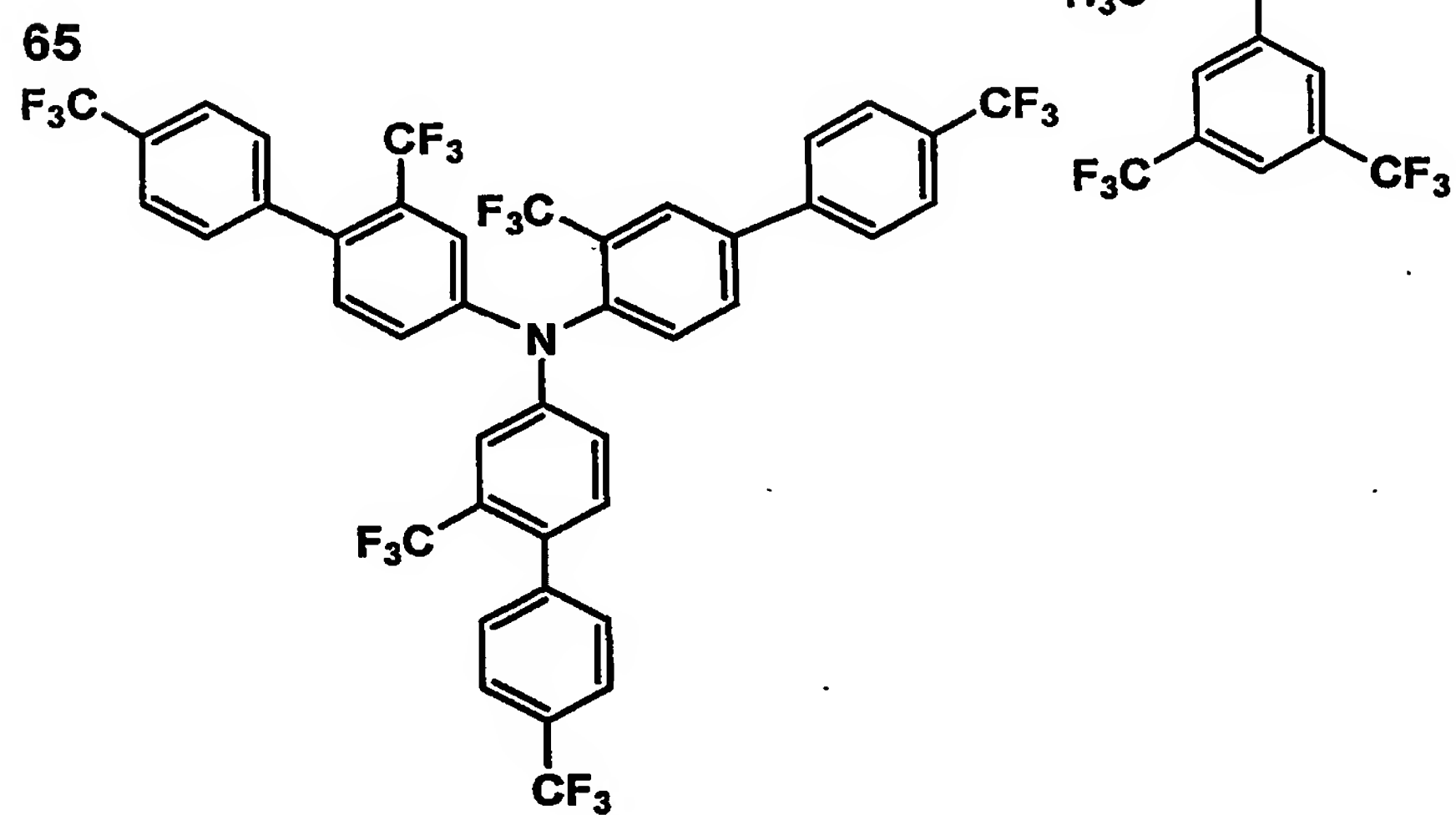
63



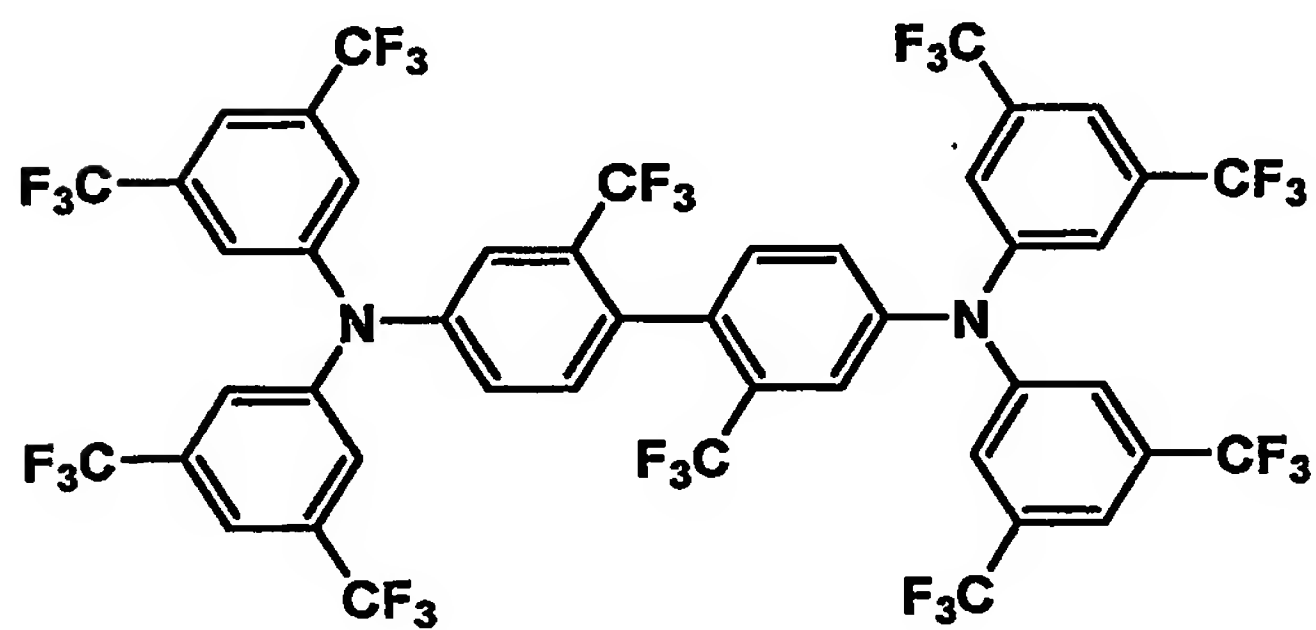
64



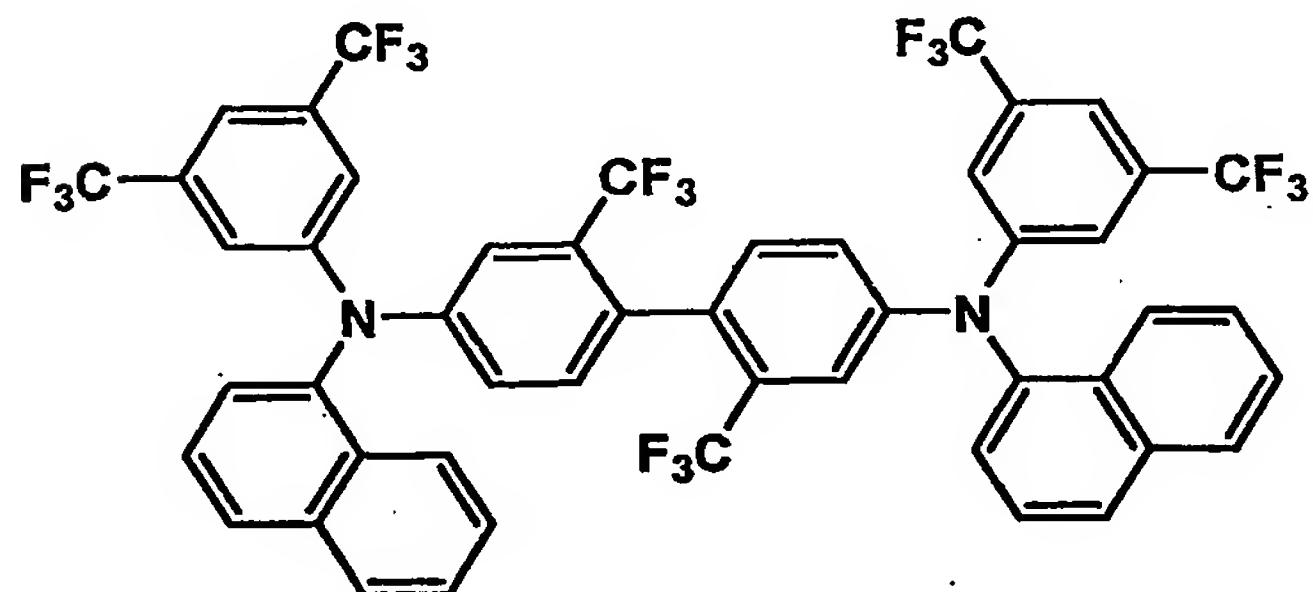
65



66



67



本発明に係る化合物は、分子量が450～1500であることが好ましい。これにより、本発明の効果をより得ることができる。

上記化合物の合成法の例として30の合成法を示す。

2, 2-ビス(4-アミノフェニル)-ヘキサフルオロプロパン2.0gと3,
5 5-ビス(トリフルオロメチル)ヨードベンゼン8.0gを酢酸パラジウムとトリ
-tert-ブチルホスフィン触媒として、キシレン溶媒中で、塩基としてナト
リウム-tert-ブトキシドを使用して8時間加熱攪拌した。反応終了後、酢酸エチル
とテトラヒドロフランと水を加えて有機層を抽出した。硫酸マグネシウムで乾燥後、
溶媒を減圧留去してからカラムクロマトグラフィーで精製した後、アセトニトリル
10 で再結晶し、30を2.2g得た。

本発明に係る発光層はリン光性化合物を含有している。これにより、高い発光効率を得ることができる。

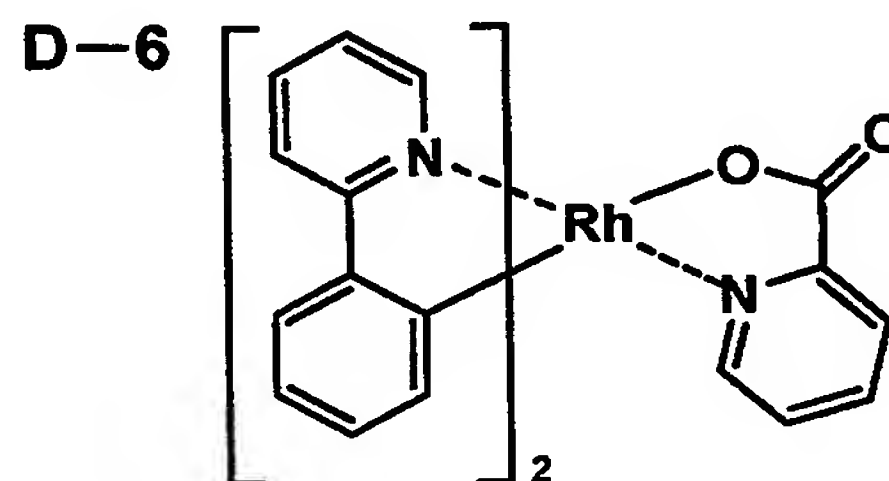
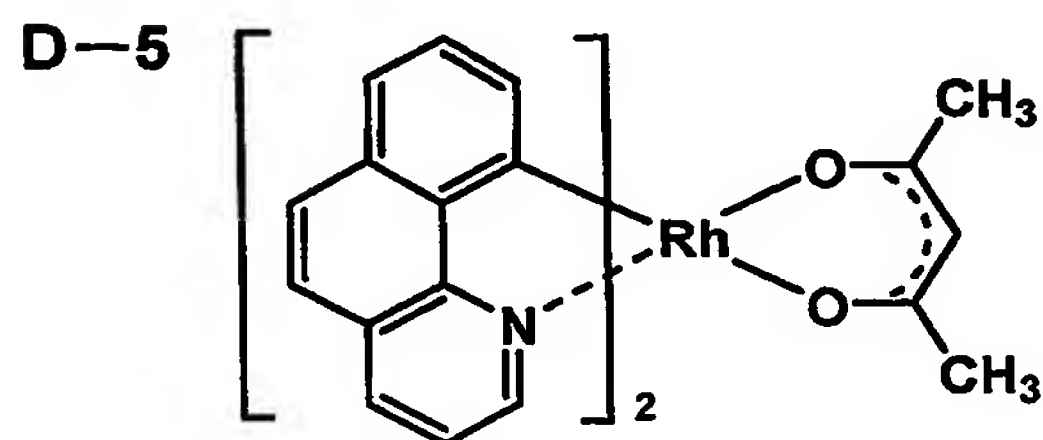
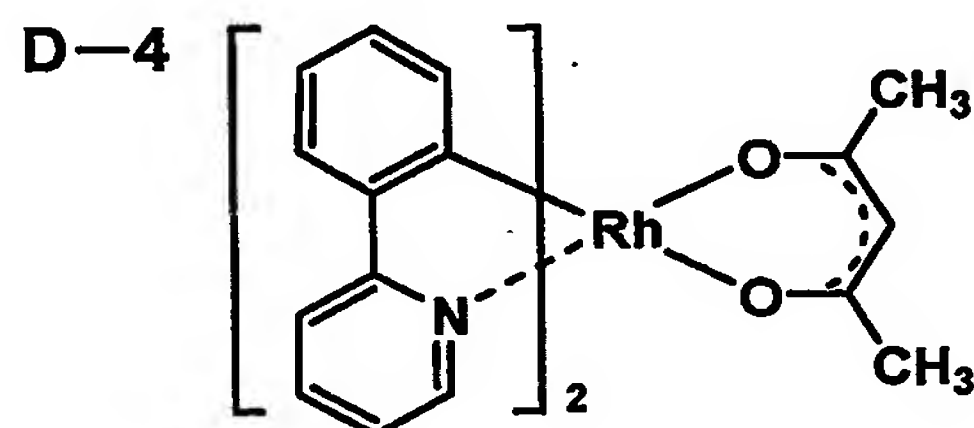
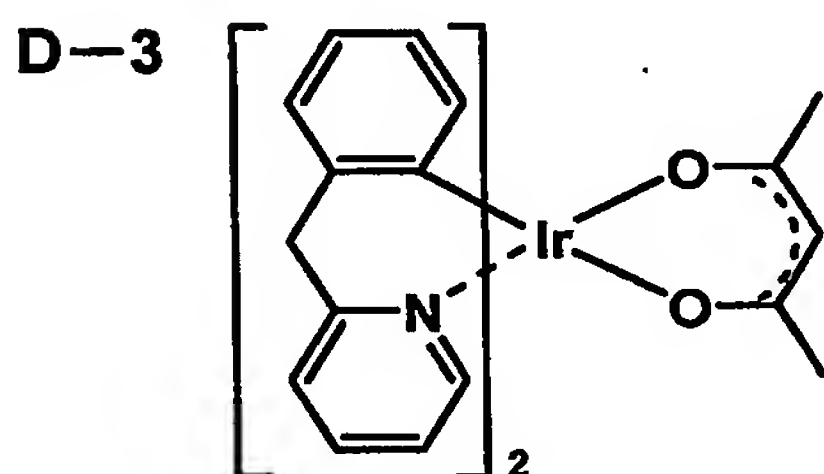
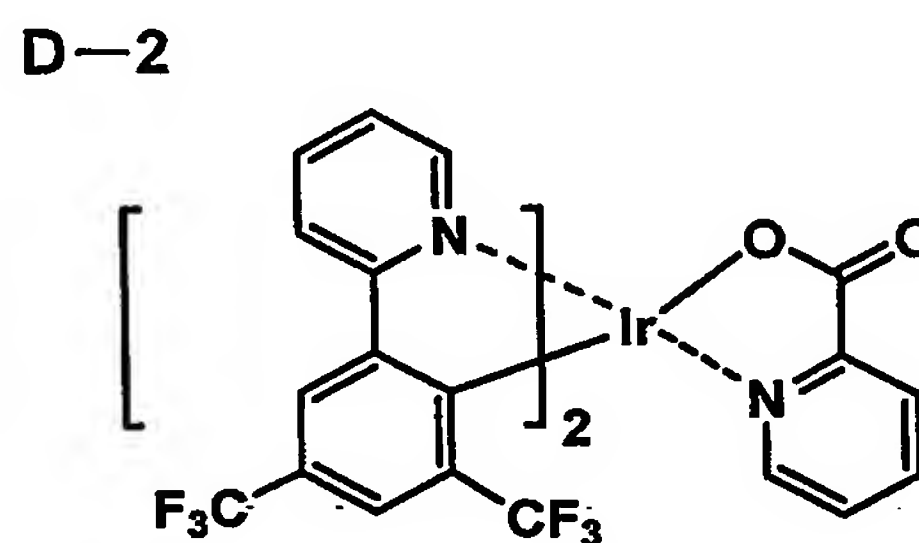
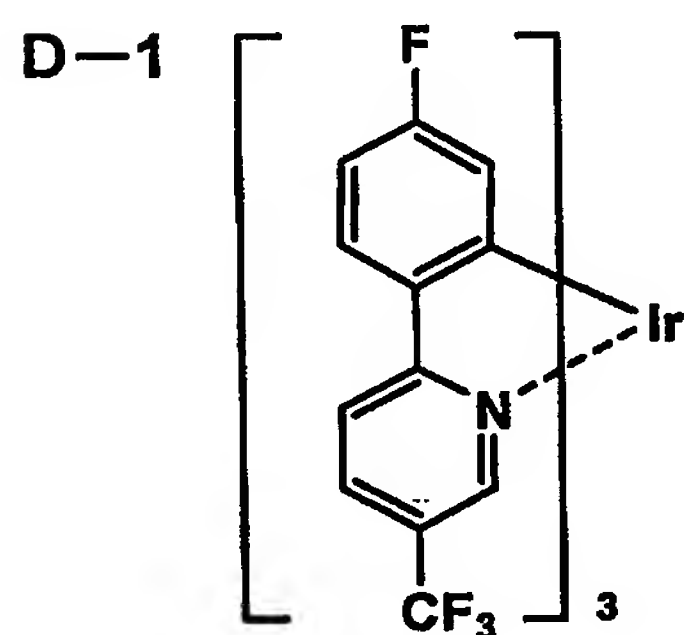
本発明に係る発光層に含有されるリン光性化合物は、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。例えば、特開20
15 01-247859号明細書に挙げられるイリジウム錯体あるいはWO00/7
0, 655号明細書16～18ページに挙げられるような式で表される、例えば、
トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム等やオスミウム錯体、あるいは2, 3,
7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23H-ポルフィリン
白金錯体のような白金錯体もドーパントとして挙げられる。ドーパントとしてこの
20 ようなリン光性化合物を用いることにより、内部量子効率の高い発光有機EL素子
を実現できる。

本発明で用いられるリン光性化合物としては、好ましくは元素の周期律表で8族の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくは、イリジウム化合物、オス

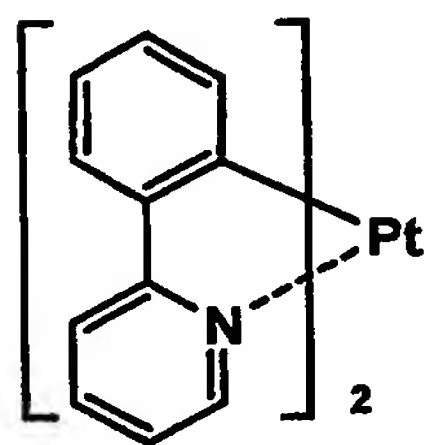
ミウム化合物、または白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

以下に、本発明で用いられるリン光性化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。これらの化合物は、例えば、*Inorg. Chem.* 40巻、

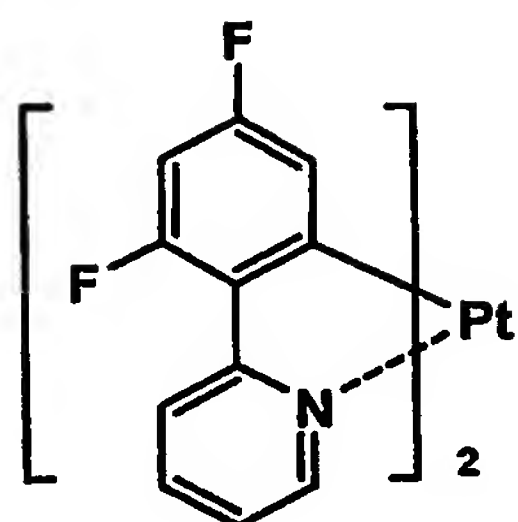
5 1704～1711に記載の方法等により合成できる。



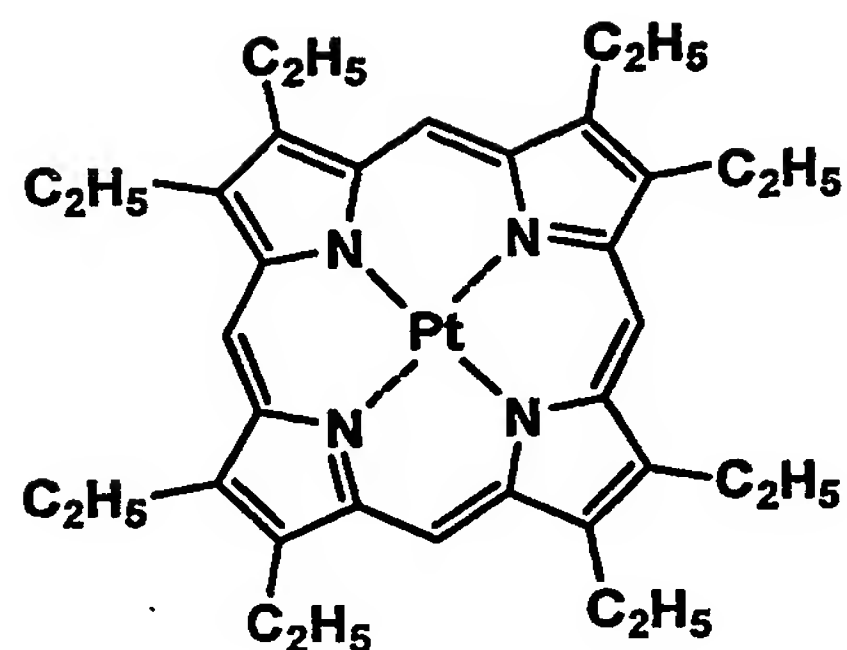
Pt-1



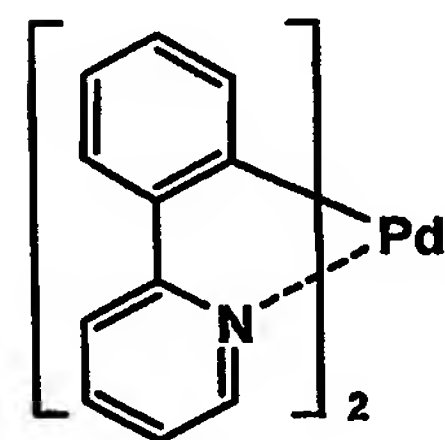
Pt-2



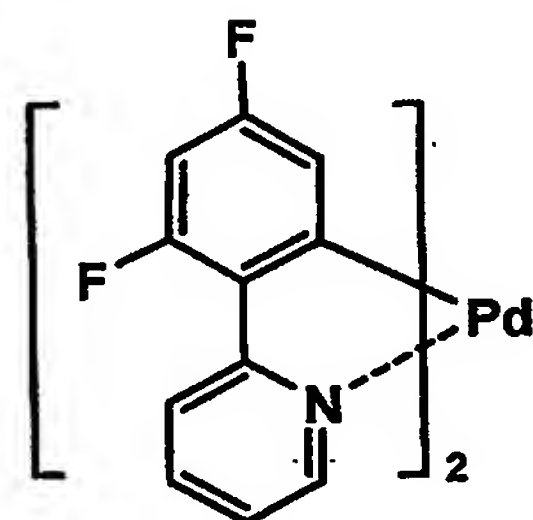
Pt-3



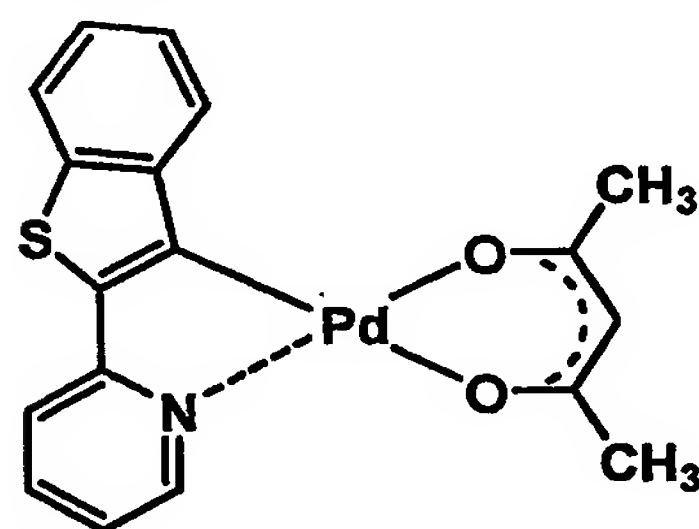
Pd-1



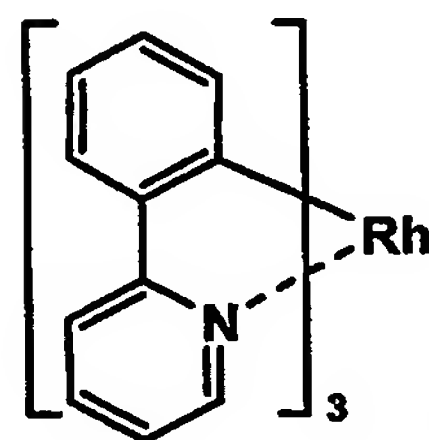
Pd-2



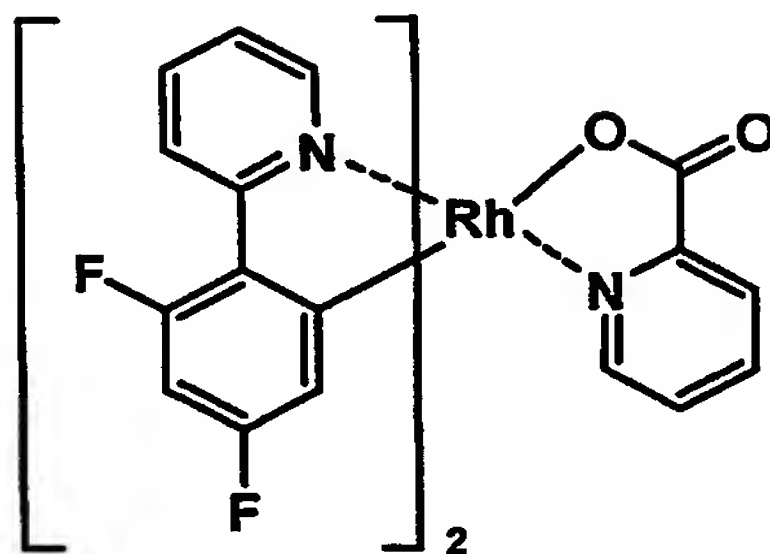
Pd-3



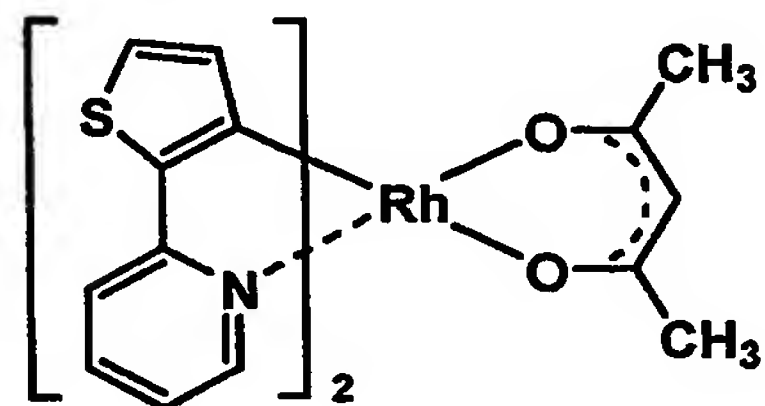
Rh-1



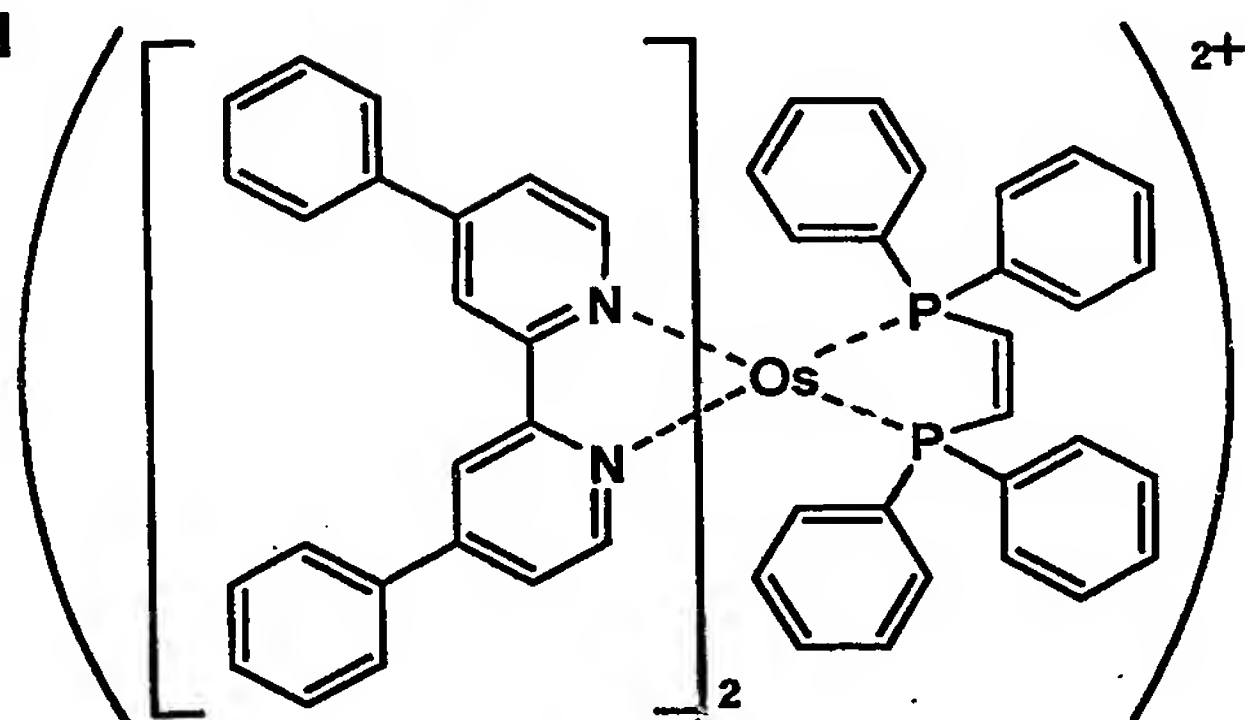
Rh-2



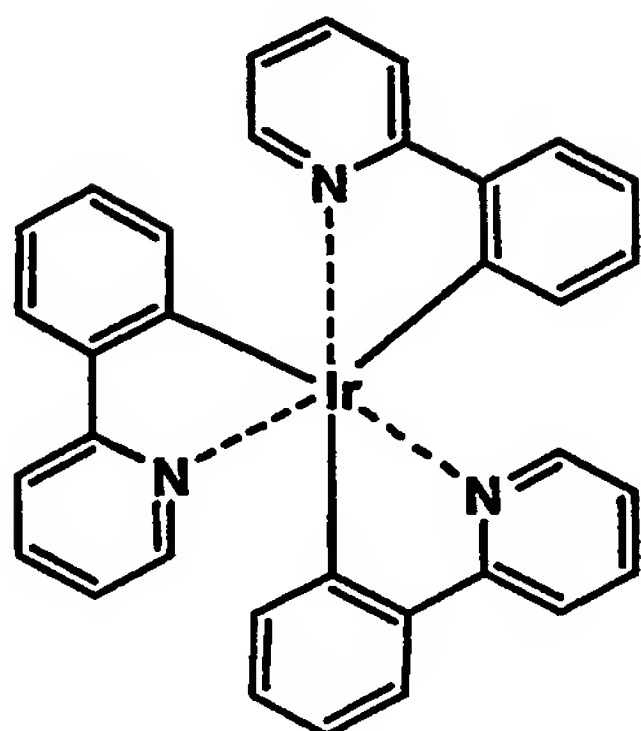
Rh-3



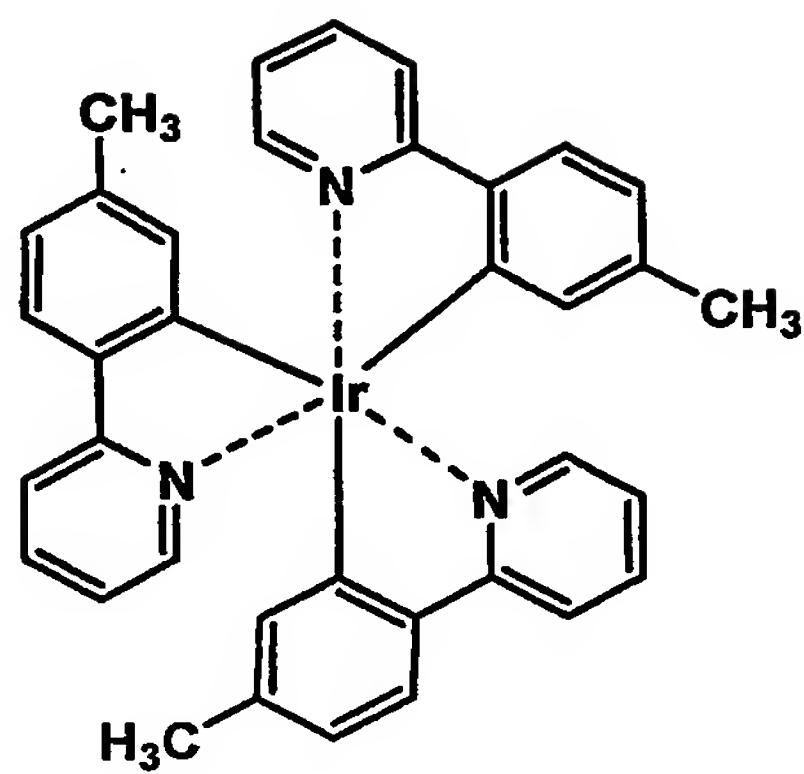
A-1



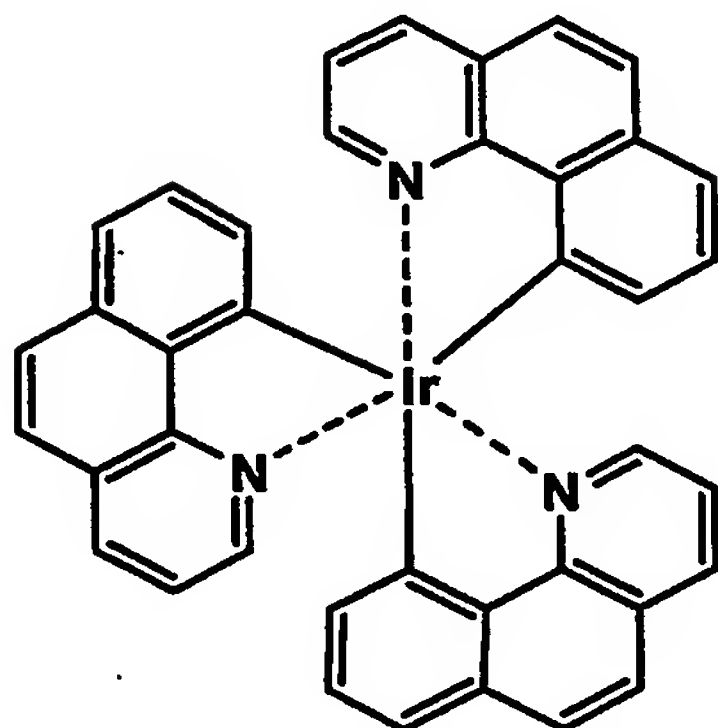
Ir-1



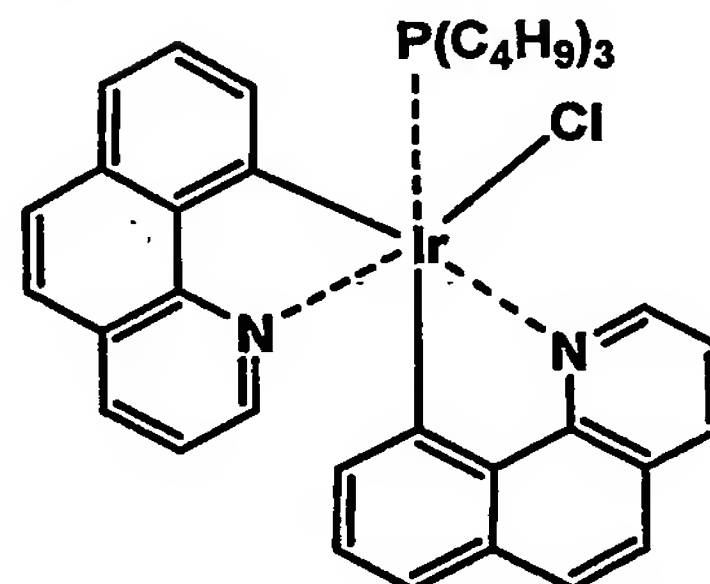
Ir-2



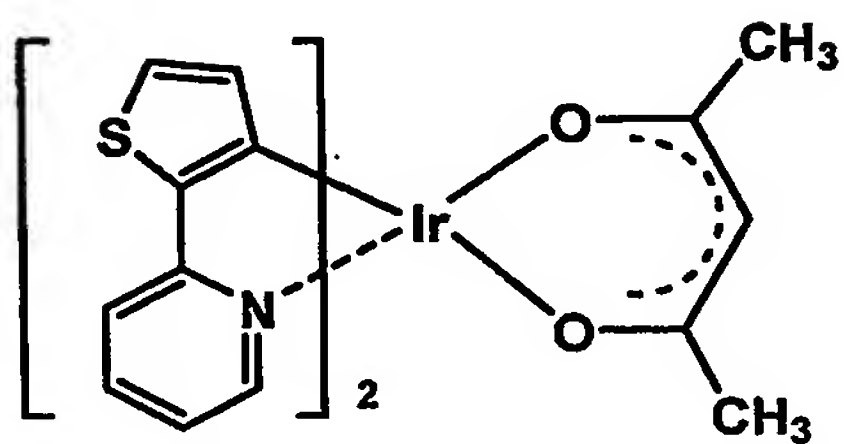
Ir-3



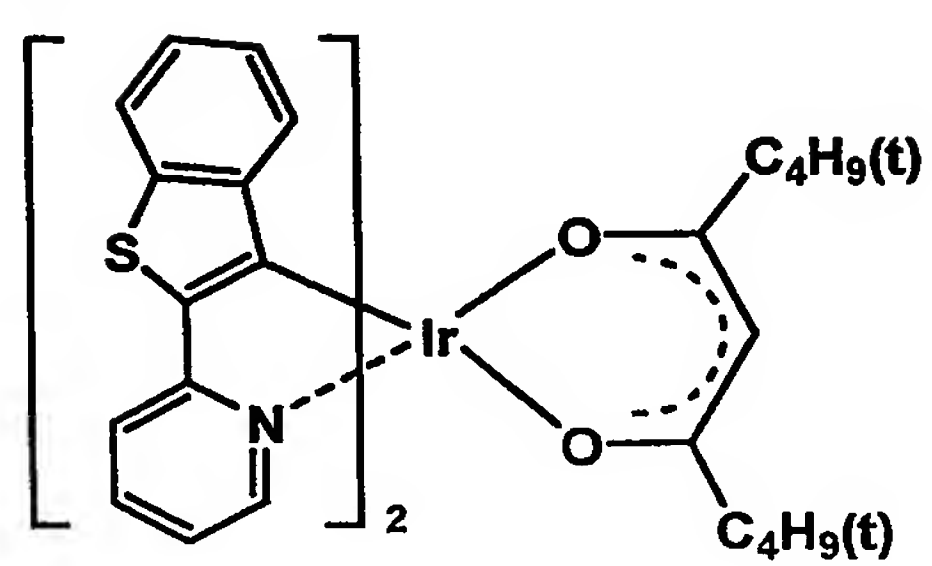
Ir-4



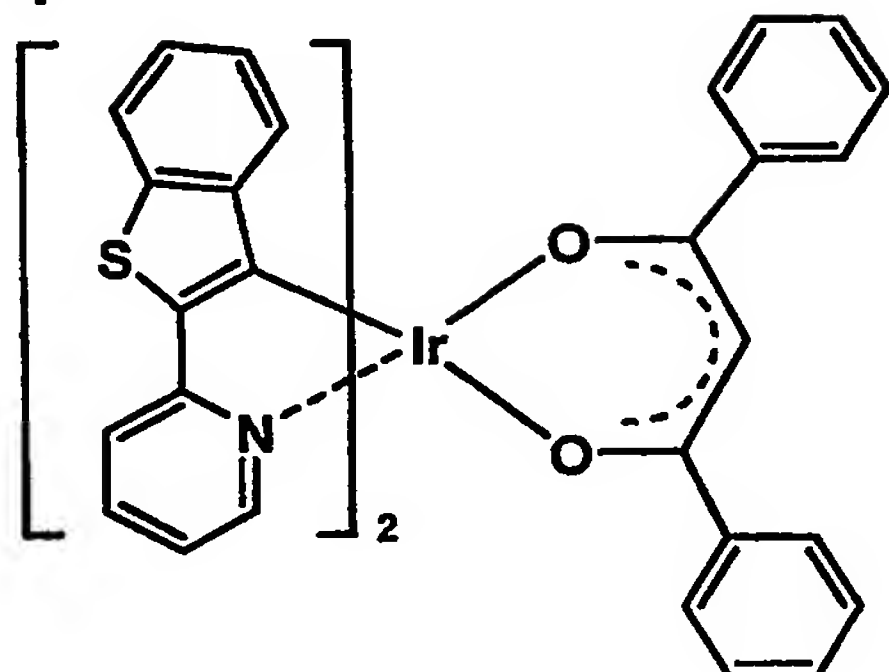
Ir-5



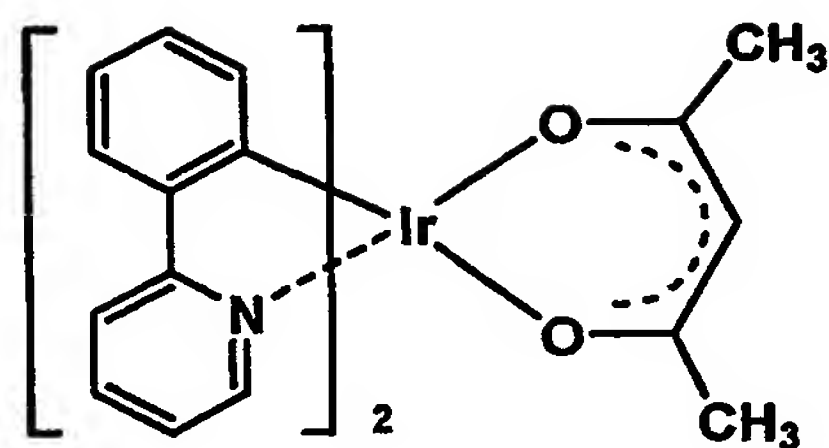
Ir-6



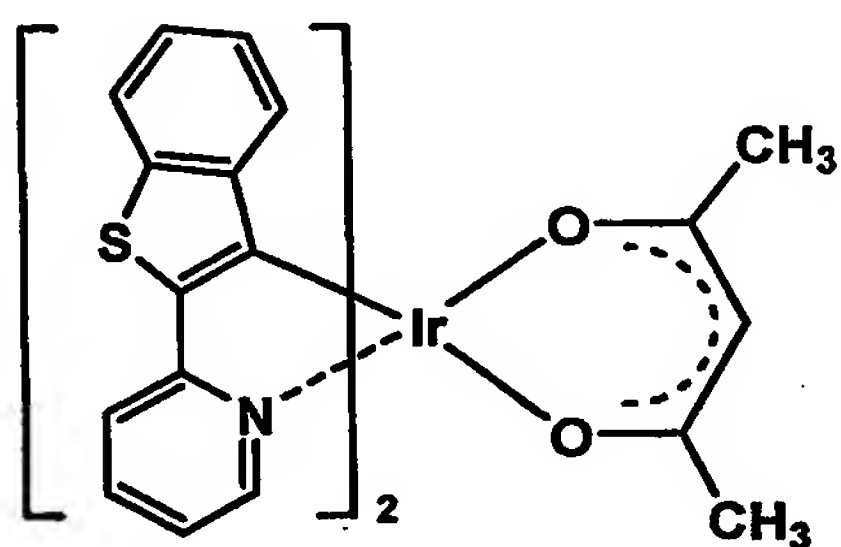
Ir-7



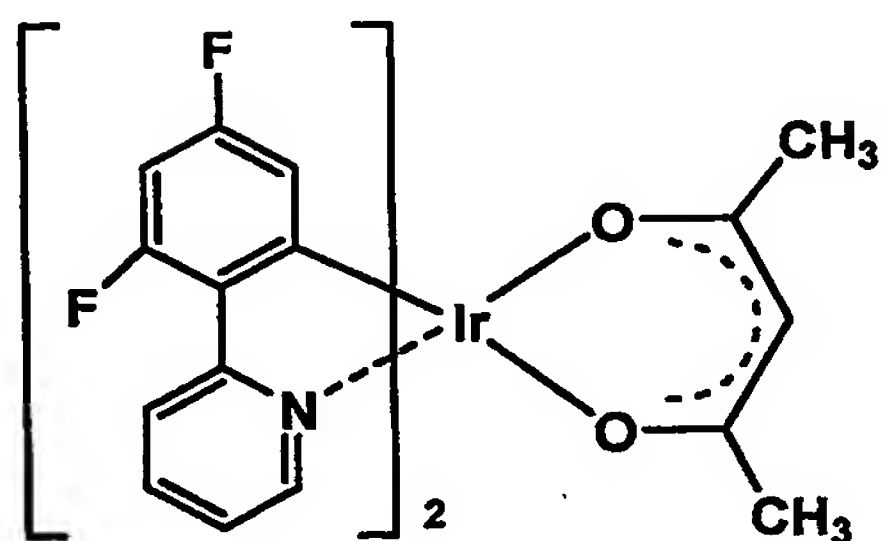
Ir-8



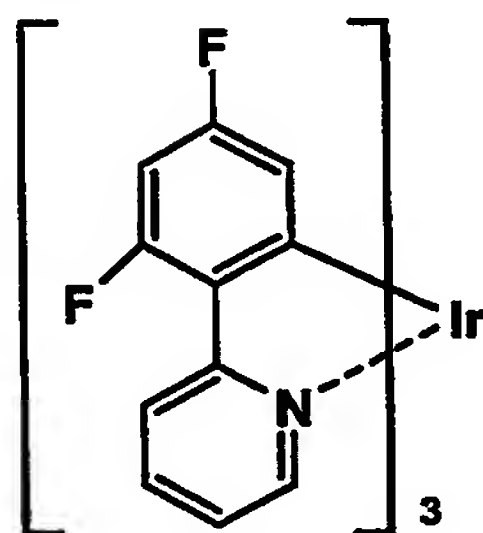
Ir-9



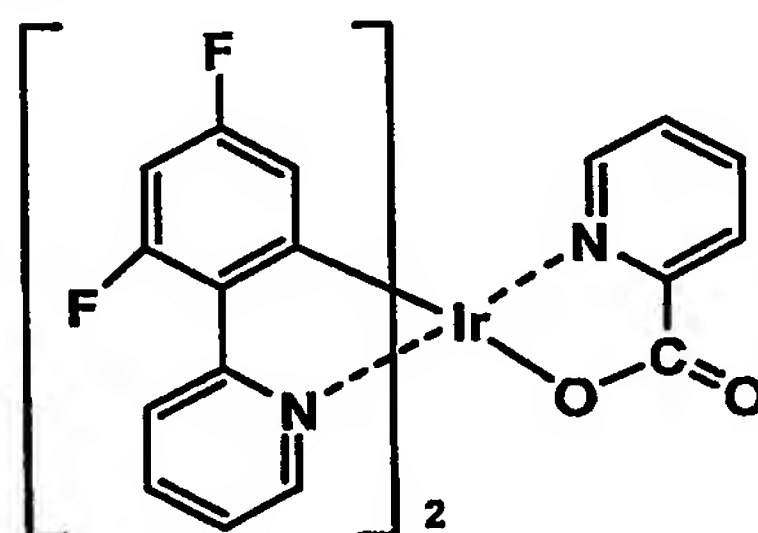
Ir-10



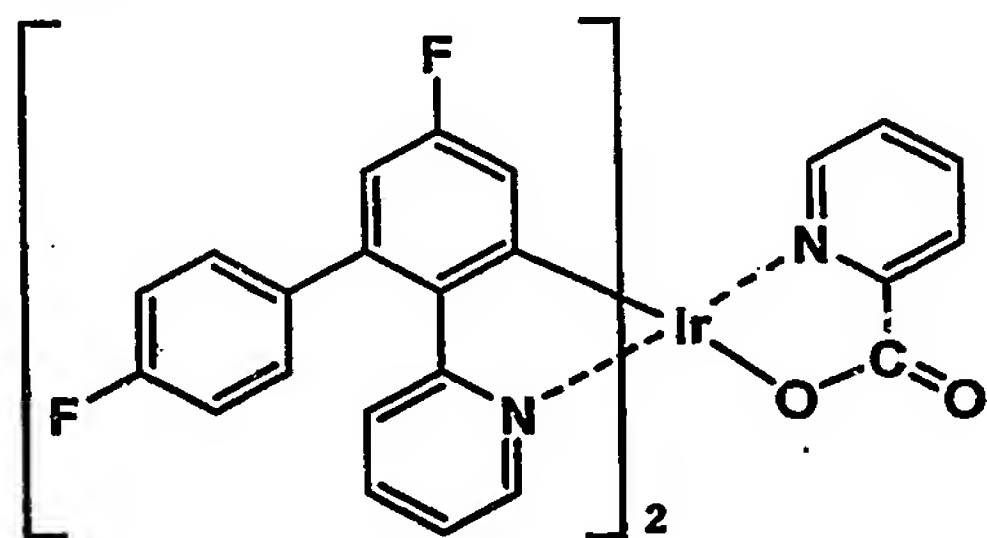
Ir-11



Ir-12



Ir-13



このほかにも、例えば、J. Am. Chem. Soc. 123巻4304~4312頁(2001年)、WO00/70655号、WO02/15645号、特開

2001-247859号、特開2001-345183号、特開2002-117978号、特開2002-170684号、特開2002-203678号、特開2002-235076号、特開2002-302671号、特開2002-324679号、特開2002-332291号、特開2002-332292号、
5 特開2002-338588号等に記載の一般式であげられるイリジウム錯体あるいは具体的例として挙げられるイリジウム錯体、特開2002-8860号記載の式(IV)で表されるイリジウム錯体等が挙げられる。

本発明に係るリン光性化合物は、溶液中のリン光量子収率が25℃において0.001以上である。好ましくは、0.01以上である。さらに、好ましくは、0.1以上である。
10

リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398ページ(1992年版、丸善)に記載の方法で測定することが出来る。

本発明においては、リン光性化合物を含有する発光層と陰極との間に存在し、発光層に隣接する隣接層にHOMOが-5.7 eV~-7.0 eV、LUMOが-1.3~-2.3 eVを満たし電子吸引基を有する化合物を含有させているが、通常この隣接層は有機EL素子では後述する電子輸送層や正孔阻止層に該当する。
15

発光層に隣接する正孔阻止層や電子輸送層は、電子を輸送する機能を有しつつ発光層から移動してくる正孔を陰極に到達するのを阻止する役割を果たしているが、特にリン光性化合物を含有する発光層に隣接するこれらの層にHOMOが-5.7 eV~-7.0 eV、LUMOが-1.3~-2.3 eVを満たし電子吸引基を有する化合物を含有させることで、リン光性化合物を含有する発光層から移動してくる正孔を陰極に到達するのを阻止する効果をより一層高めることができ、高い発光輝度、発光効率を有し、長寿命である有機EL素子とすることができる。
20

次に、本発明の有機EL素子の構成層についてさらに詳細に説明する。

本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。

(i) 陽極／発光層／電子輸送層／陰極

5 (ii) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極

(iii) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極

(iv) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／
陰極

(v) 陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／
10 陰極バッファ層／陰極

〈陽極〉

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチ
15 ンオキシド（ITO）、 SnO_2 、 ZnO 等の導電性透明材料が挙げられる。また、
IDIXO（ In_2O_3 - ZnO ）等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は（100 μm 以上程度）、上記
20 電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10～1000 nm、好ましくは10～200

nmの範囲で選ばれる。

〈陰極〉

- 一方、陰極としては、仕事関数の小さい（4 e V以下）金属（電子注入性金属と称する）、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用
- 5 いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム－カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／銅混合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸
- 10 化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えばマグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）混合物、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法によ
- 15 り薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω /□以下が好ましく、膜厚は通常10 nm～5 μ m、好ましくは50～200 nmの範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。
- 20 また、陰極に上記金属を1～20 nmの膜厚で作製した後に、陽極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明または半透明の陰極を作製ことができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製することができる。

次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる、注入層、阻止層、電子輸送層等について説明する。

〈バッファ層〉：陰極バッファ層、陽極バッファ層

注入層は必要に応じて設け、陰極バッファ層（電子注入層）と陽極バッファ層（正孔注入層）があり、上記のごとく陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び、陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

バッファ層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されており、陽極バッファ層と陰極バッファ層とがある。

陽極バッファ層（正孔注入層）は、特開平9-45479号、同9-260062号、同8-288069号等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

陰極バッファ層（電子注入層）は、特開平6-325871号、同9-17574号、同10-74586号等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。上記バッファ層（注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1nm～5μmの範囲が好ましい。

〈阻止層〉：正孔阻止層、電子阻止層

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層であり、発光層に隣接して設けられている。正孔阻止層は電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

前述したように、有機EL素子が正孔阻止層を有している場合は、本発明に係る隣接層は正孔阻止層に該当する。正孔阻止層の正孔阻止材料として前述したHOMOが $-5.7\text{ eV} \sim -7.0\text{ eV}$ 、LUMOが $-1.3 \sim -2.3\text{ eV}$ を満たし電子吸引基を有する化合物を用いることで高い発光輝度、発光効率を有し、長寿命である有機EL素子とすることができる。

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層であり、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

〈発光層〉

本発明に係る発光層は、リン光性化合物を含有し、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

リン光性化合物を用いることで、発光効率の高い有機EL素子とすることができる。

リン光性化合物は、前述したリン光性化合物を用いることができる。

リン光性化合物の発光は、原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光性化合物に移動させることでリン光性化合物からの

発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光性化合物がキャリアトラップとなり、リン光性化合物上でキャリアの再結合が起こりリン光性化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光性化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

本発明においては、リン光性化合物のリン光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には、中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることができるが、リン光性化合物のリン光発光波長が380～480 nmにリン光発光の極大波長を有することが好ましい。このようなリン光発光波長を有するものとしては、青色に発光する有機EL素子や白色に発光する有機EL素子が挙げられるが、これらの素子はより一層発光輝度、発光効率を高め、長寿命化を図ることができる。

また、リン光性化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。リン光性化合物の種類、ドーピング量を調整することで白色発光が可能であり、照明、バックライトへの応用もできる。

また、発光層には、リン光性化合物の他にホスト化合物を含有してもよい。

本発明においてホスト化合物は、発光層に含有される化合物のうちで室温（25℃）においてリン光発光のリン光量子収率が、0.01未満の化合物である。

本発明においては、ホスト化合物として前述した本発明の有機EL素子用材料を用いることが好ましい。これにより、より一層発光効率を高くすることができる。

さらに、公知のホスト化合物を複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種もちいることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高

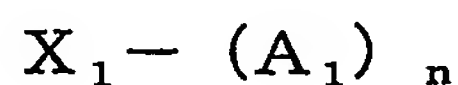
効率化することができる。これらの公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T_g（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。

公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物が挙げられる。

特開2001-257076、特開2002-308855、特開2001-313179、特開2002-319491、特開2001-357977、特開2002-334786、特開2002-8860、特開2002-334787、特開2002-15871、特開2002-334788、特開2002-43056、特開2002-334789、特開2002-75645、特開2002-338579、特開2002-105445、特開2002-343568、特開2002-141173、特開2002-352957、特開2002-203683、特開2002-363227、特開2002-231453、特開2003-3165、特開2002-234888、特開2003-27048、特開2002-255934、特開2002-260861、特開2002-280183、特開2002-299060、特開2002-302516、特開2002-305083、特開2002-305084、特開2002-308837等が挙げられる。

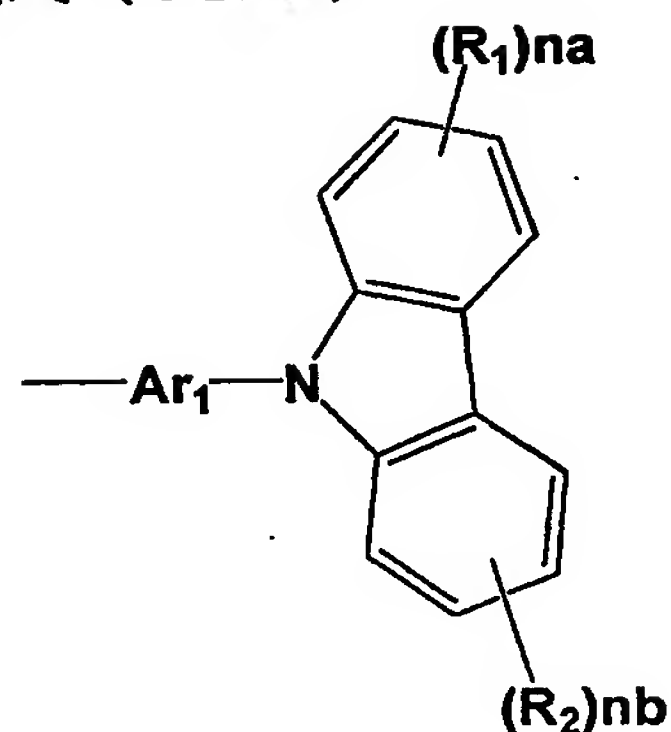
本発明において、ホスト化合物としては、下記一般式（CA1）で表されるカルbazol誘導体を用いられることが好ましい。

一般式（CA1）



[式中、 $-A_1$ は下記一般式（CA2）で表され、同一でも異なってもよい。]

一般式 (CA 2)



前記一般式 (CA 1) において、 X_1 は直接結合、または、2 価の連結基である。

2 価の連結基としては、置換基を有しても良いアルキレン基、置換基を有しても良

5 いアリーレン基、酸素原子、硫黄原子、及びこれらの組み合わせ等が挙げられる。

n は 2 ～ 4 の整数を表す。

前記一般式 (CA 2) において、 Ar_1 は置換基を有しても良い 2 価の芳香族炭

化水素環基、または置換基を有しても良い芳香族複素環基を表す。好ましくは、置

換基を有しても良い 2 価のフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、

10 フェナントリル基、ピレニル基、ピリジル基、トリアジル基、ピラジル基、キノキ

サリル基、チエニル基を示す。最も好ましくは、置換基を有していても良い 2 価の

フェニル基である。

前記置換基としては、前記本発明の一般式 (1) ～ (12) で説明したものと同

義である。

15 一般式 (CA 2) において、 R_1 、 R_2 は各々独立して、置換基を表す。 na 、 n

b は 0 ～ 4 の整数を表す。

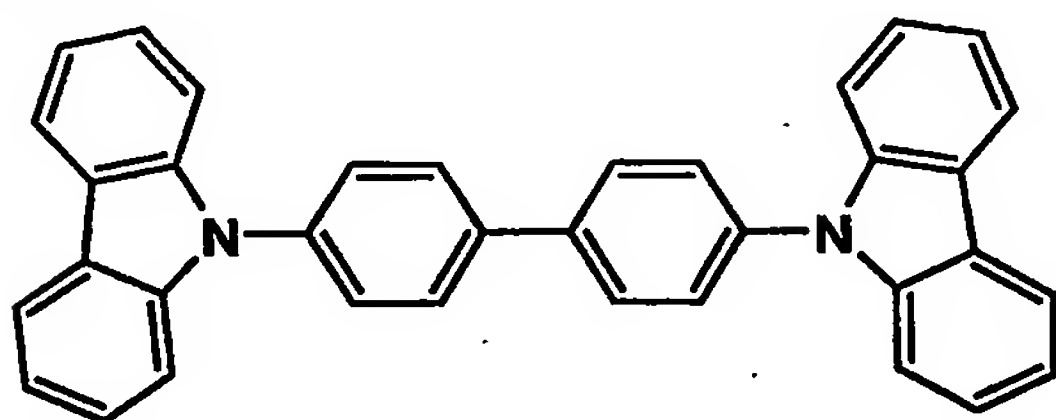
R_1 、 R_2 が置換基を表す場合、その置換基としては、前記本発明の一般式 (1) ～ (12) で説明したものと同義である。

本発明において、ホスト化合物としては、カルボリン誘導体、または該カルボリン誘導体のカルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子の少なくとも一つが窒素原子で置換されている環構造を有する誘導体であることが好ましい。

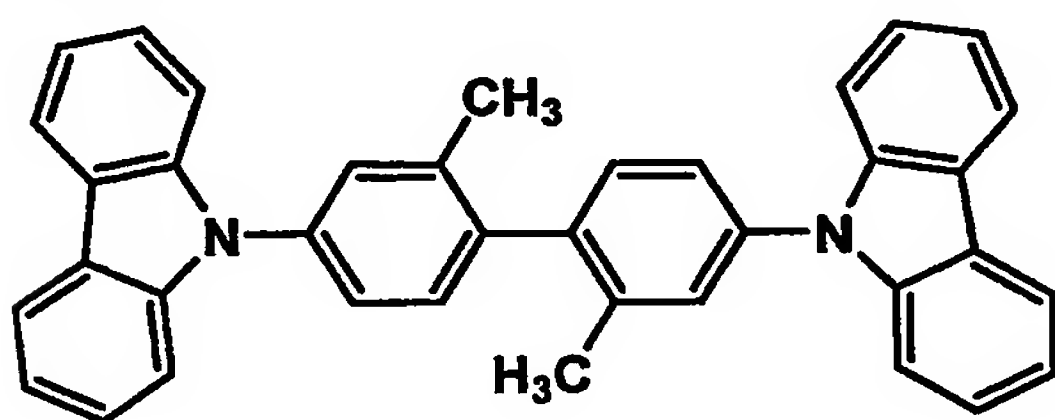
他に、本発明のホスト化合物として好ましいものの具体例を挙げる。

5

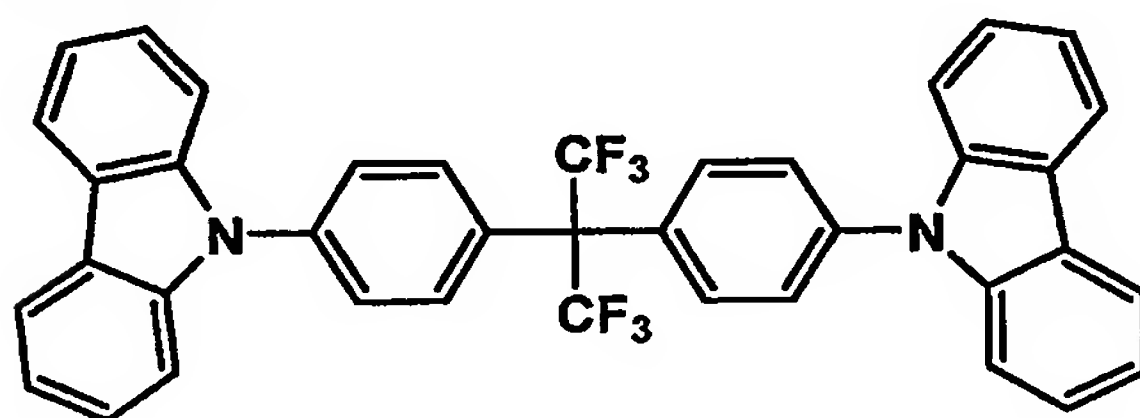
CBP

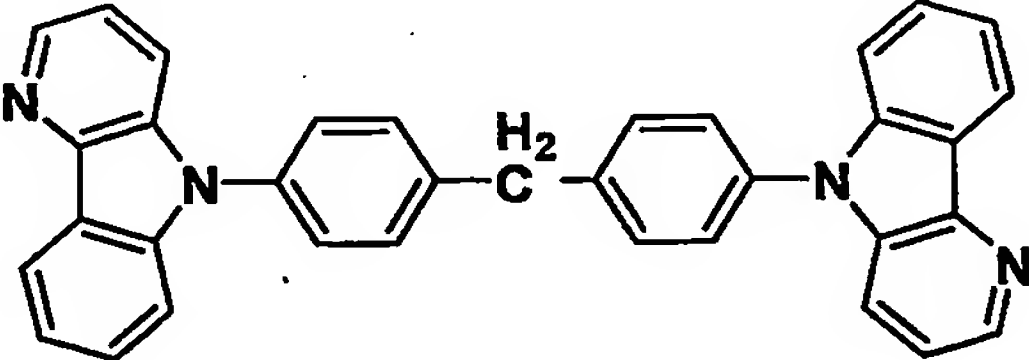
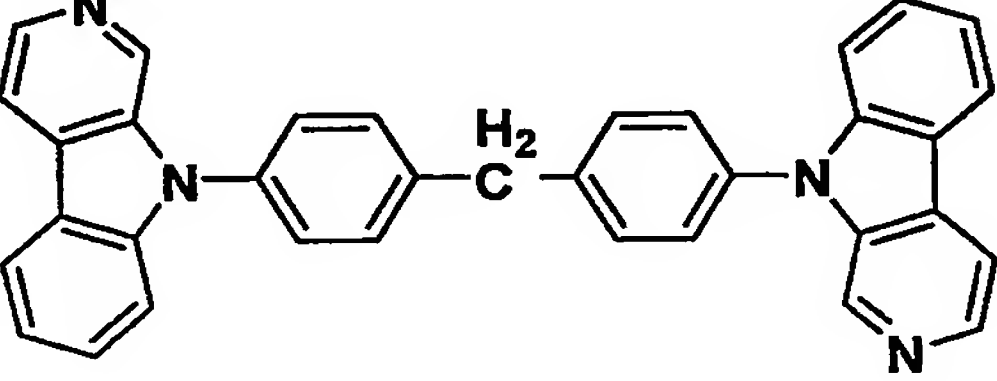
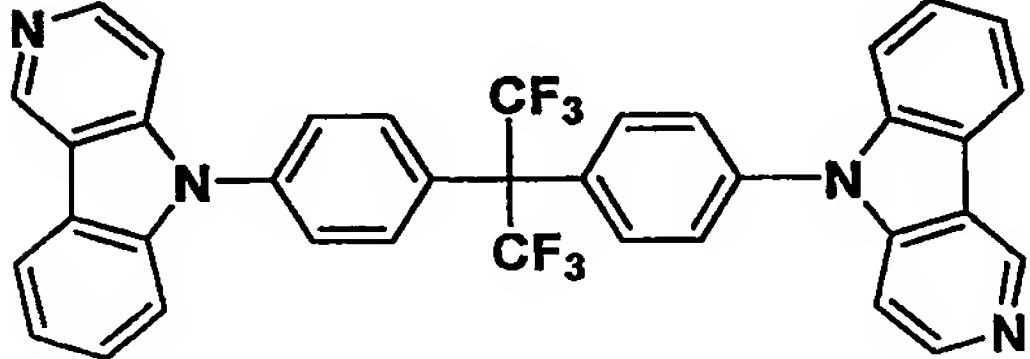
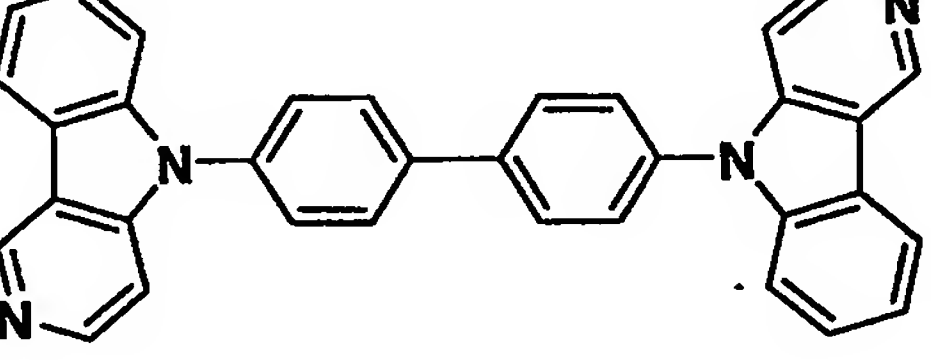
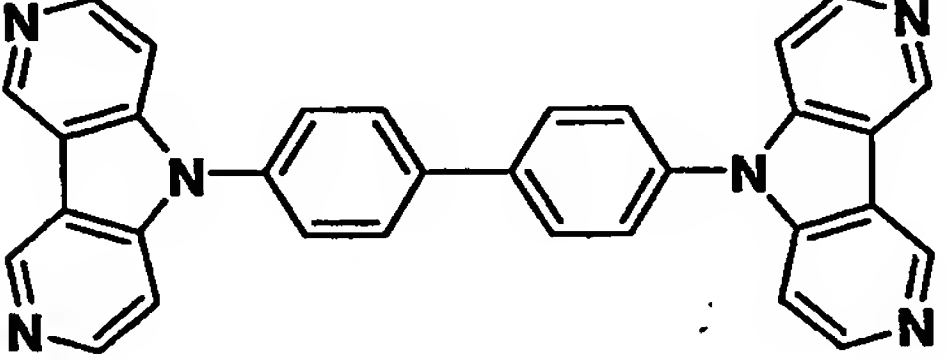
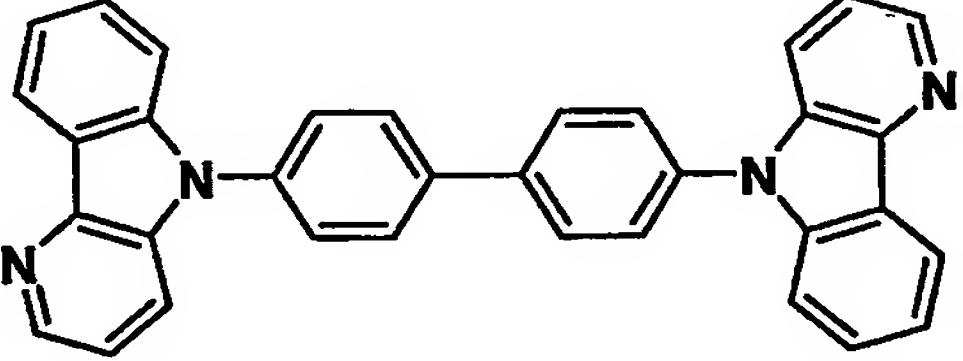
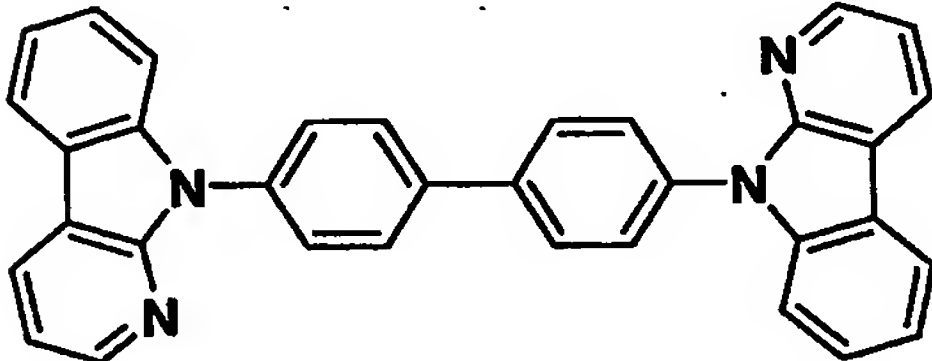
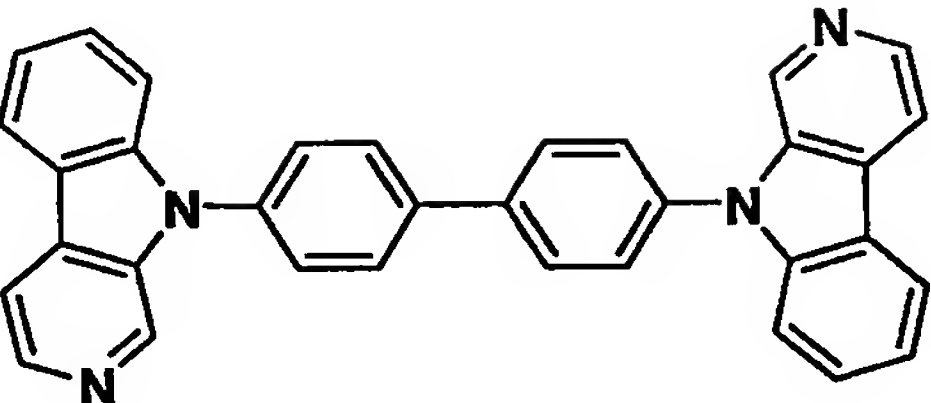
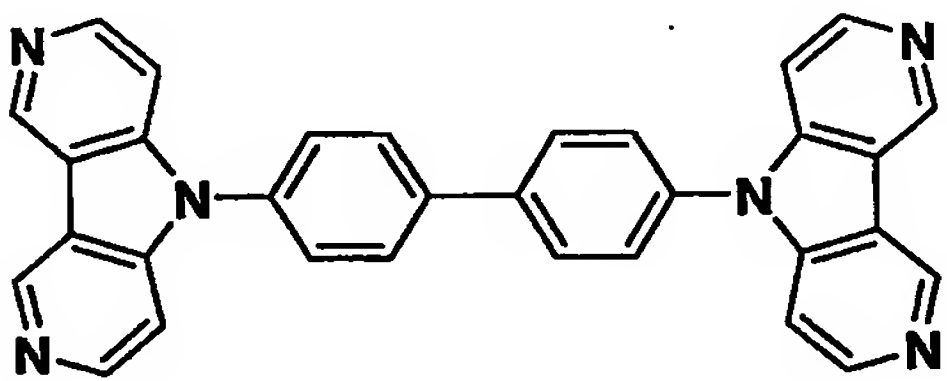
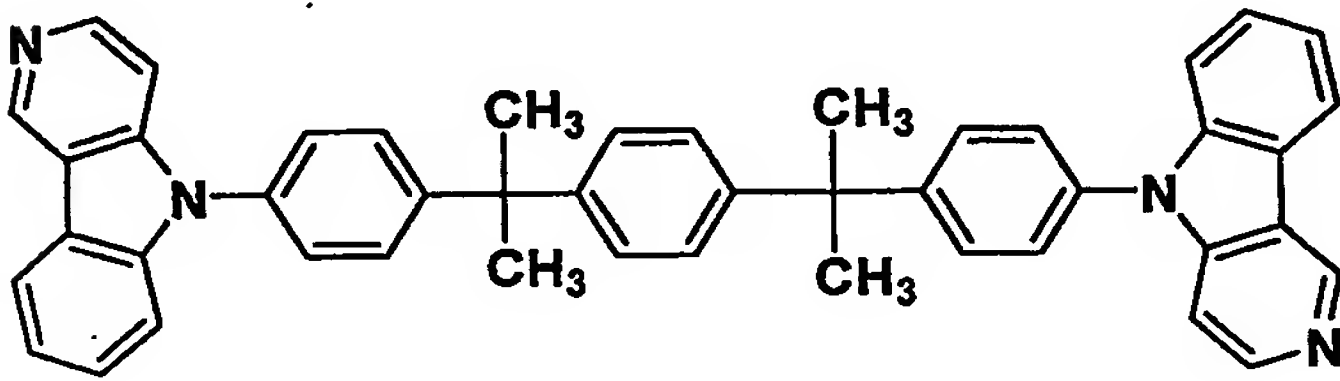
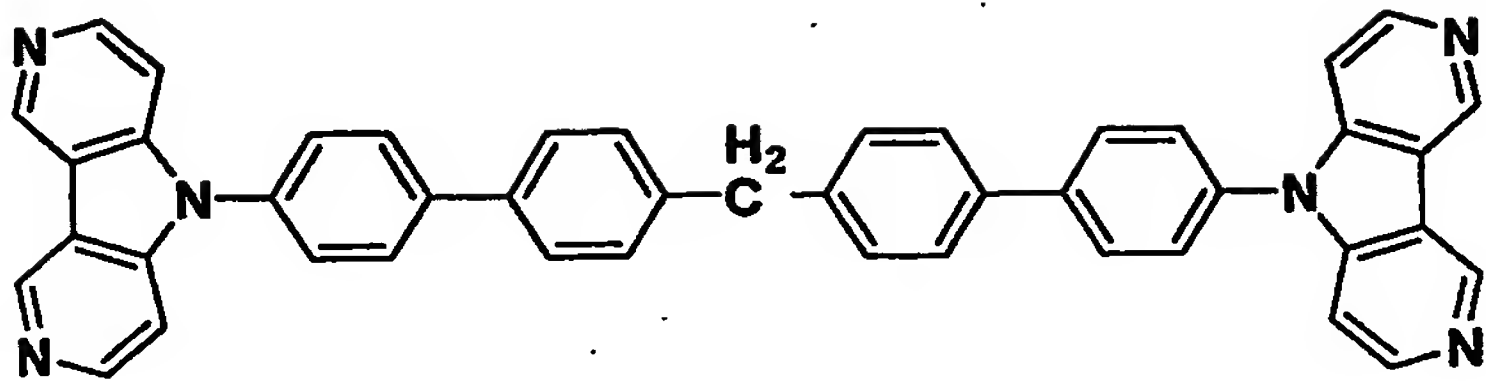


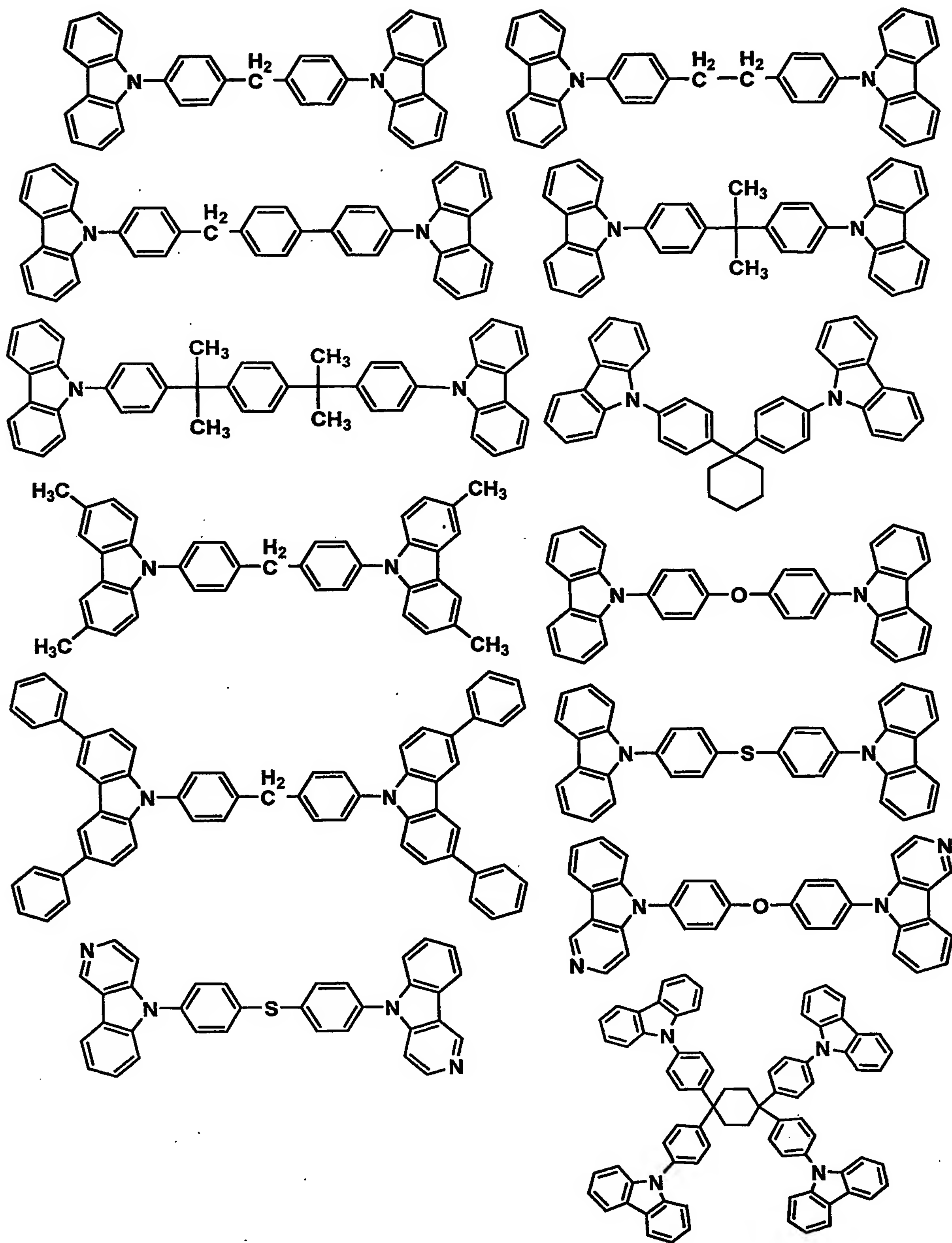
TCBP

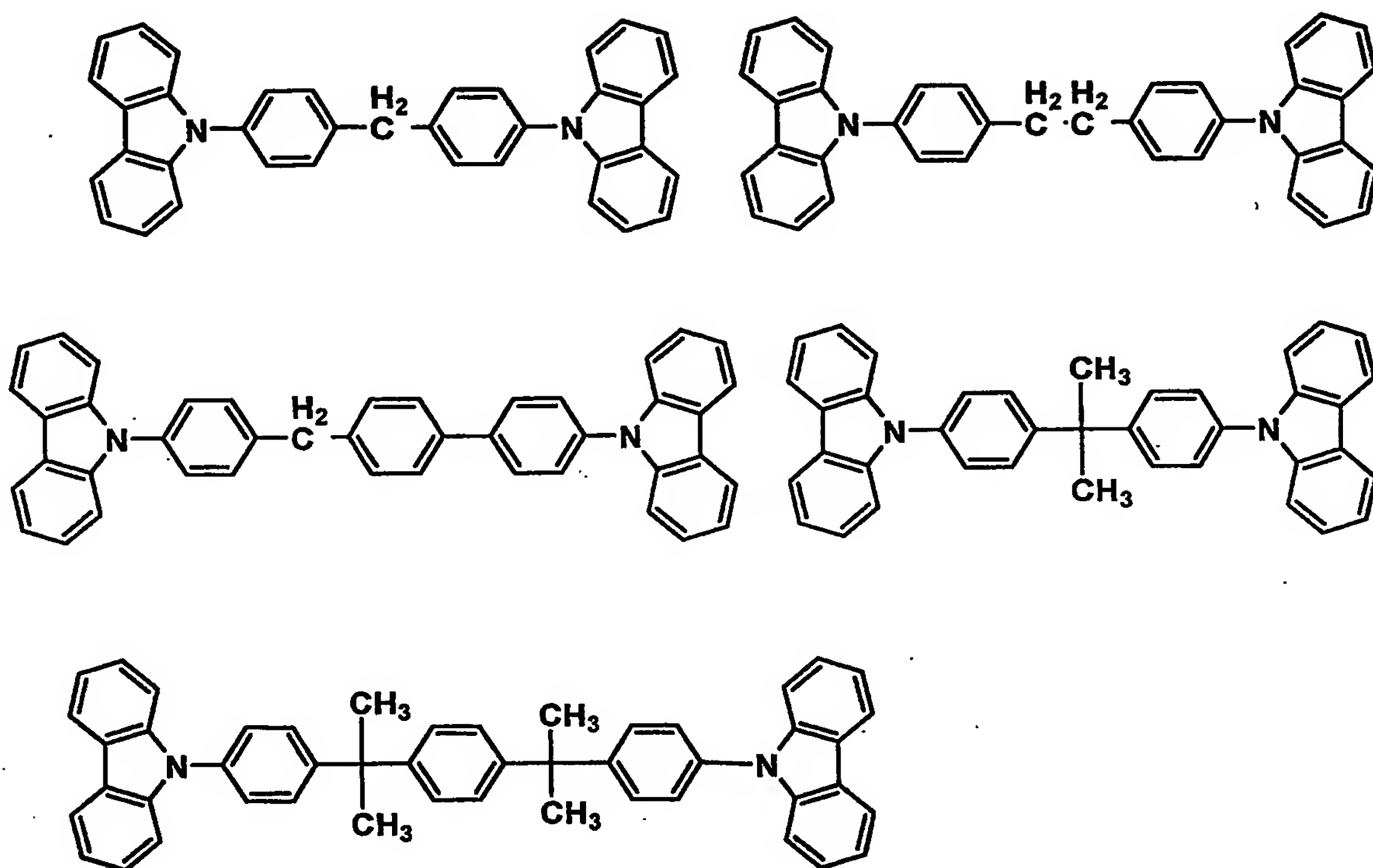


ATCBP









また、発光層は、さらに蛍光極大波長を有する蛍光性化合物を含有していてもよい。この場合、ホスト化合物とリン光性化合物から蛍光性化合物へのエネルギー移動で、有機EL素子としての電界発光は蛍光極大波長を有する蛍光性化合物からの

5 発光も得られる。蛍光極大波長を有する蛍光性化合物として好ましいのは、溶液状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで、蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。具体的な蛍光極大波長を有するホスト化合物としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系

10 色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素等が挙げられる。蛍光量子収率は、前記第4版実験化学講座7の分光IIの362頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定することができる。

本明細書の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、東京大学出版会、1985）の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS

—1000（ミノルタ製）で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。

- 5 発光層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5 nm～5 μm、好ましくは5 nm～200 nmの範囲で選ばれる。この発光層は、これらのリン光性化合物やホスト化合物が1種または2種以上からなる一層構造であってもよいし、あるいは、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

〈正孔輸送層〉

- 10 正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層または複数層設けることができる。

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えばトリアゾール誘導

- 15 体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェン
20 オリゴマー等が挙げられる。

正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノフェニル; N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス (3 - メチルフェニル) - [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミン (TPD) ; 2, 2 - ビス (4 - ジー p - トリルアミノフェニル) プロパン; 1, 1 - ビス (4 - ジー p - トリルアミノフェニル) シクロヘキサン; N, N, N', N' - テトラ - p - トリル - 4, 4' - ジアミノビフェニル; 1, 1 - ビス (4 - ジー p - トリルアミノフェニル) - 4 - フェニルシクロヘキサン; ビス (4 - ジメチルアミノ - 2 - メチルフェニル) フェニルメタン; ビス (4 - ジー p - トリルアミノフェニル) フェニルメタン; N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ (4 - メトキシフェニル) - 4, 4' - ジアミノビフェニル; N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4' - ビス (ジフェニルアミノ) クオードリフェニル; N, N, N - トリ (p - トリル) アミン; 4 - (ジー p - トリルアミノ) - 4' - [4 - (ジー p - トリルアミノ) スチリル] スチルベン; 4 - N, N - ジフェニルアミノ - (2 - ジフェニルビニル) ベンゼン; 3 - メトキシ - 4' - N, N - ジフェニルアミノスチルベンゼン; N - フェニルカルバゾール、さらには、米国特許第 5, 061, 569 号明細書に記載されている 2 個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば 4, 4' - ビス [N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ] ビフェニル (NPD)、特開平 4 - 308688 号に記載されているトリフェニルアミンユニットが 3 つスターバースト型に連結された 4, 4', 4'' - トリス [N - (3 - メチルフェニル) - N - フェニルアミノ] トリフェニルアミン (MTDATA) 等が挙げられる。

さらに、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、p 型 - Si, p 型 - SiC 等の

無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5 nm～5 μm程度、好ましくは5～200 nmである。この正孔輸送層は、上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

〈電子輸送層〉

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層または複数層設けることができる。

また、層構成の(i)、(ii)のように有機EL素子に正孔阻止層を設けず、発光層に隣接するのが電子輸送層（この場合は電子輸送層が正孔阻止層も兼ねている）であるような場合には、電子輸送層の電子輸送材料として前述したHOMOが-5.7 eV～-7.0 eV、LUMOが-1.3～-2.3 eVを満たし電子吸引基を有する化合物を用いることで高い発光輝度、発光効率を有し、長寿命である有機EL素子とすることができる。

層構成の(iii)、(iv)、(v)のように有機EL素子の発光層に隣接して正孔阻止層が設けられているような場合は、電子輸送層は、従来電子輸送層に用いられている電子輸送材料を用いることができる。電子輸送材料としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができ、例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアント

ロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

- 5 また、前述したHOMOが -5.7 eV ～ -7.0 eV 、LUMOが -1.3 ～ -2.3 eV を満たし電子吸引基を有する化合物を用いてもよい。

さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

- また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス（8-キノリノール）
10 アルミニウム（Alq）、トリス（5,7-ジクロロ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5,7-ジブromo-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛（Znq）等、及びこれらの
15 金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、GaまたはPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。
20 SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

電子輸送層は、上記電子輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はない

が、通常は5 nm～5 μm程度、好ましくは5～200 nmである。電子輸送層は、上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

〈基体（基板、基材、支持体等ともいう）〉

本発明の有機EL素子は基体上に形成されているのが好ましい。

5 本発明の有機EL素子に係る基体としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

10 樹脂フィルムとしては、例えばポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート（PC）、セルローストリアセテート（TAC）、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）等からなるフィルム等が挙げられ
15 る。樹脂フィルムの表面には、無機物または有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。ここに、
外部取り出し量子効率（%）＝有機EL素子外部に発光した光子数／有機EL素子
20 に流した電子数×100である。

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光のλmaxは

480nm以下が好ましい。

〈有機EL素子の作製方法〉

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極からなる有

5 機EL素子の作製法について説明する。

まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、1 μ m以下、好ましくは10～200nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に有機EL素子材料である陽極バッファ層、正孔輸送層、発光層、正孔阻止層、電子輸送層、陰極バッ

10 ー層の有機化合物薄膜を形成させる。

この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如く蒸着法、ウェットプロセス（スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法）等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にボート加熱温度50～450℃、真空度 10^{-6} ～ 10^{-2} Pa、蒸着速度0.01～50nm/秒、基板温度－50～300℃、膜厚0.1nm～5 μ m、好ましくは5～200nmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

20 これらの層を形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1 μ m以下好ましくは50～200nmの範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機EL素子が得られる。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作

製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

本発明の多色の表示装置は、発光層形成時のみシャドーマスクを設け、他層は共通であるのでシャドーマスク等のパターニングは不要であり、一面に蒸着法、キャ

5 スト法、スピコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

発光層のみパターニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、印刷法である。蒸着法を用いる場合にはシャドーマスクを用いたパターニングが好ましい。

また作製順序を逆にして、陰極、陰極バッファ層、電子輸送層、正孔輸送層、
10 発光層、正孔輸送層、陽極バッファ層、陽極の順に作製することも可能である。このようにして得られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧2～40V程度を印加すると、発光が観測できる。また交流電圧を印加してもよい。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

本発明の表示装置は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いる
15 ことができる。表示デバイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の3種の有機EL素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。

表示デバイス、ディスプレイとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場
20 合の駆動方式は単純マトリックス（パッシブマトリックス）方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。

本発明の照明装置は、家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、

光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。

また、本発明に係る有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよい。

このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の
5 光源、電子写真複写機的光源、光通信処理機的光源、光センサーの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより、上記用途に使用してもよい。

〈表示装置〉

本発明の有機EL素子は、照明用や露光光源のような1種のランプとして使用し
10 てもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画画像を直接視認するタイプの表示装置（ディスプレイ）として使用してもよい。動画再生用の表示装置として使用する場合は単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。または、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を3種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。または、一色の発光色、例えば白色発光をカラーフィルターを用いてBGRにし、フルカラー化することも可能である。さらに、有機ELの発光色を色変換フィルターを用いて他色に変換しフルカラー化することも可能であるが、その場合、有機EL発光の λ_{max} は480nm以下であることが好ましい。

20 本発明の有機EL素子から構成される表示装置の一例を図面に基づいて以下に説明する。

第1図は、有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。
有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプ

レイの模式図である。

ディスプレイ 1 は、複数の画素を有する表示部 A、画像情報に基づいて表示部 A の画像走査を行う制御部 B 等からなる。

5 制御部 B は、表示部 A と電氣的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部 A に表示する。

第 2 図は、表示部 A の模式図である。

10 表示部 A は基板上に、複数の走査線 5 及びデータ線 6 を含む配線部と、複数の画素 3 等とを有する。表示部 A の主要な部材の説明を以下に行う。第 2 図においては、画素 3 の発光した光が、白矢印方向（下方向）へ取り出される場合を示している。

配線部の走査線 5 及び複数のデータ線 6 は、それぞれ導電材料からなり、走査線 5 とデータ線 6 は格子状に直交して、直交する位置で画素 3 に接続している（詳細は図示せず）。

15 画素 3 は、走査線 5 から走査信号が印加されると、データ線 6 から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

次に、画素の発光プロセスを説明する。

20 第 3 図は、画素の模式図である。

画素は、有機 EL 素子 10、スイッチングトランジスタ 11、駆動トランジスタ 12、コンデンサ 13 等を備えている。複数の画素に有機 EL 素子 10 として、赤色、緑色、青色発光の有機 EL 素子を用い、これらを同一基板上に並置することで

フルカラー表示を行うことができる。

第3図において、制御部Bからデータ線6を介してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部Bから走査線5を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。

画像データ信号の伝達により、コンデンサ13が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機EL素子10の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7から有機EL素子10に電流が供給される。

制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。

すなわち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

ここで、有機EL素子10の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画像データ信

号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。

また、コンデンサ13の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

- 5 本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機EL素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

第4図は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。第4図において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に
10 設けられている。

順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子がなく、製造コストの低減が計れる。

〈実施例〉

- 15 以下、実施例により本発明を説明するが、本発明の実施態様はこれらに限定されるものではない。

実施例1

〈有機EL素子1-1～16の作製〉

- 陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO（イン
20 ジウムチンオキシド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行なった。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、

モリブデン製抵抗加熱ボートにm-MTDATXAを200mg入れ、別のモリブ
デン製抵抗加熱ボートにATCBPを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱
ボートにバソキュプロイン(BC)を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱
ボートにIr-12を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにA
5 lq₃を200mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

次いで、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、m-MTDATXAの入った
前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで透明支持基板に
蒸着し50nmの正孔輸送層を設けた。更に、ATCBPとIr-12の入った前
記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.2nm/sec、0.01
10 2nm/secで前記正孔輸送層上に共蒸着して30nmの発光層を設けた。

更に、BCの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/s
ecで前記発光層の上に蒸着して膜厚10nmの正孔阻止層を設けた。

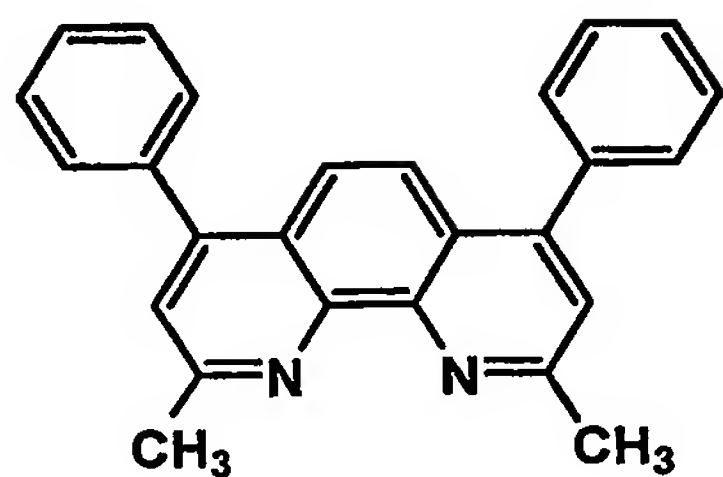
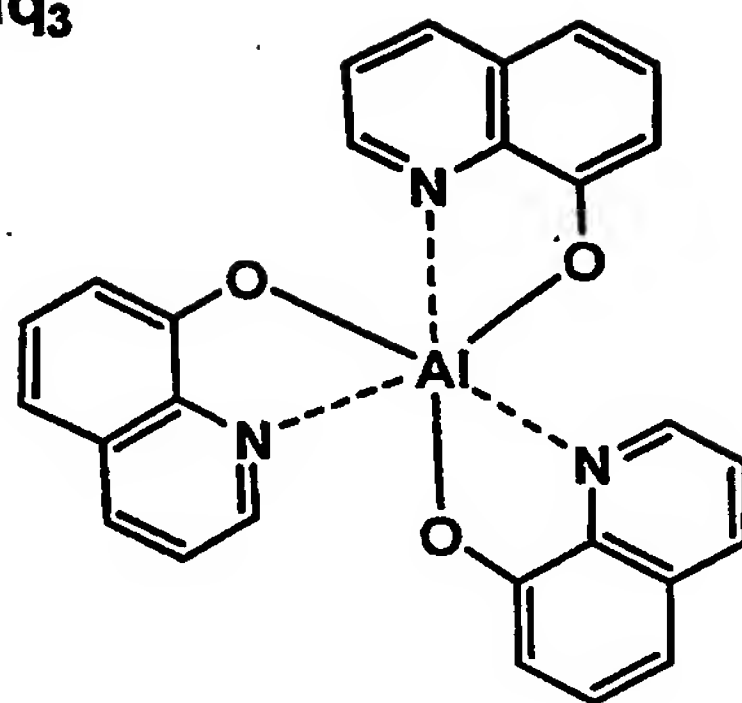
更に、Alq₃の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、打撃速度0.1nm
/secで前記正孔阻止層上に蒸着して膜厚40nmの電子輸送層を設けた。

15 なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

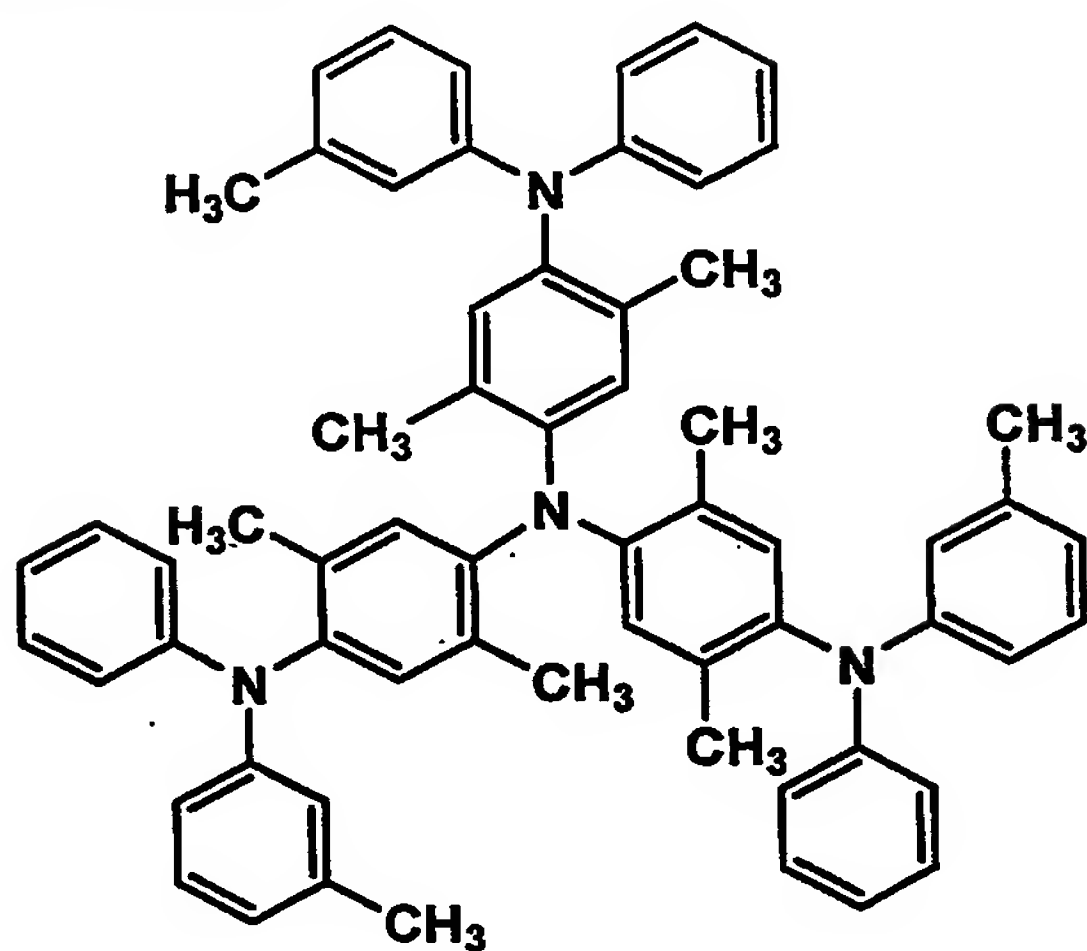
引き続き陰極バッファ層としてフッ化リチウム0.5nmを蒸着し、更に、ア
ルミニウム110nmを蒸着して陰極を形成し、有機EL素子1-1を作製した。

有機EL素子1-1の作製において、BCを表1に示す有機EL素子用材料に置
き換えて正孔阻止層を形成した以外は有機EL素子1-1と同じ方法で1-2～
20 1-16を作製した。上記、および、表中で使用した化合物の構造を以下に示す。

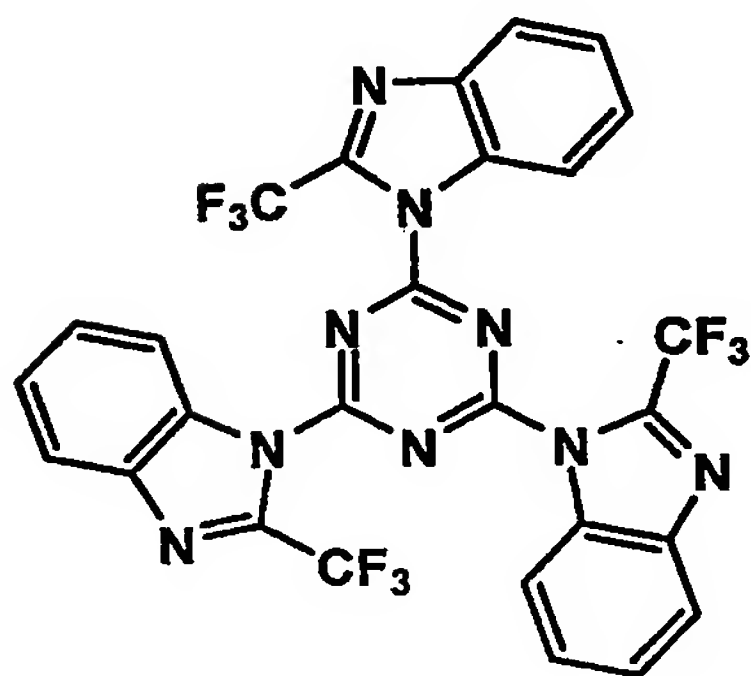
BC

Alq₃

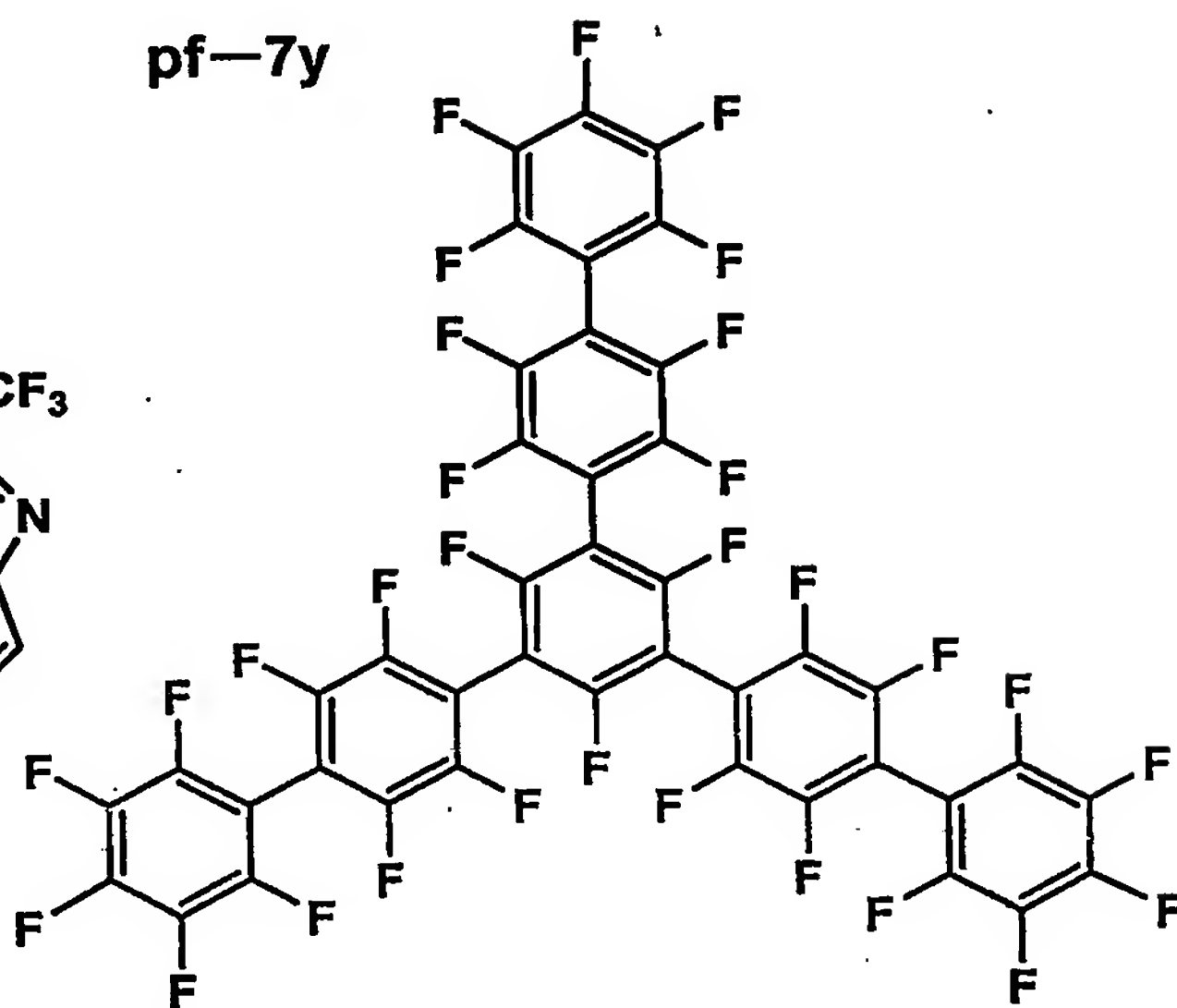
m-MTDATXA

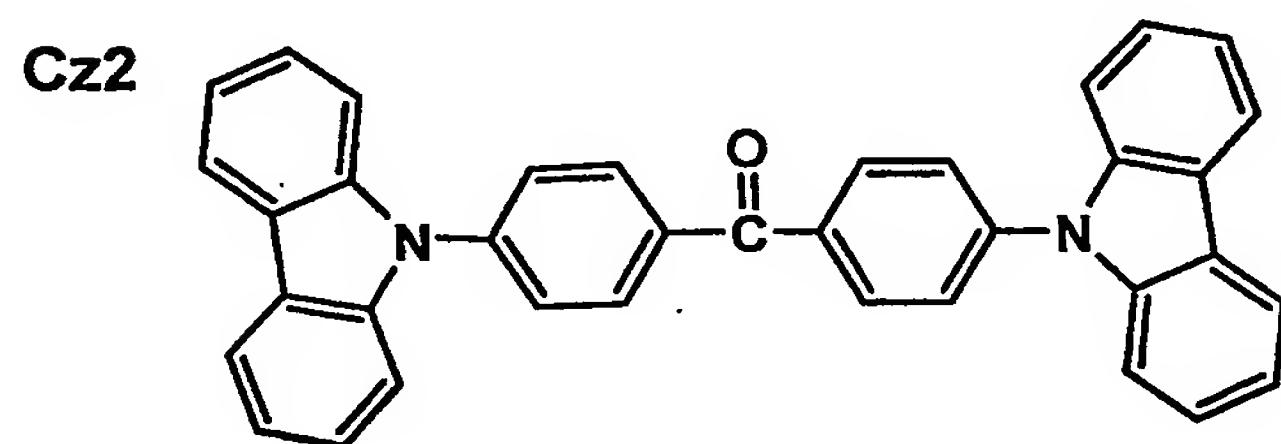
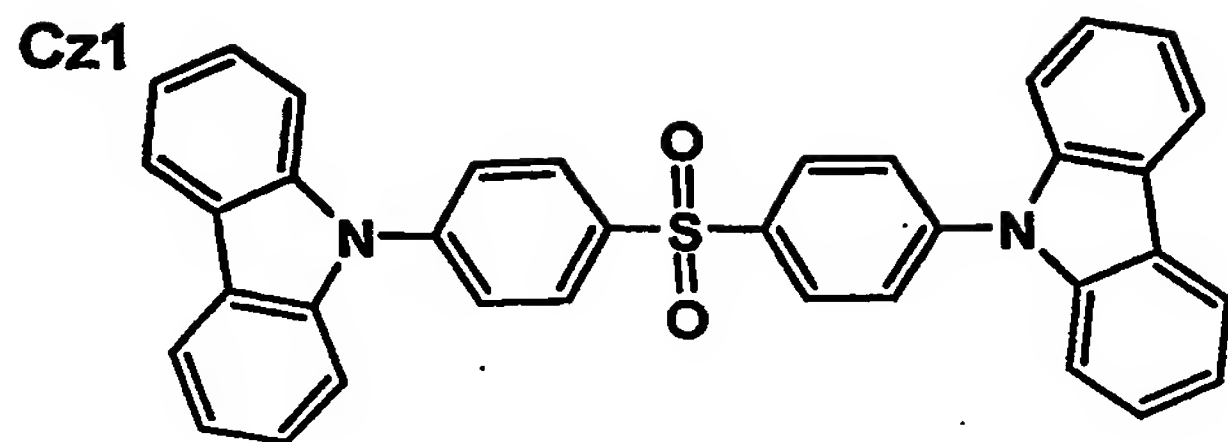
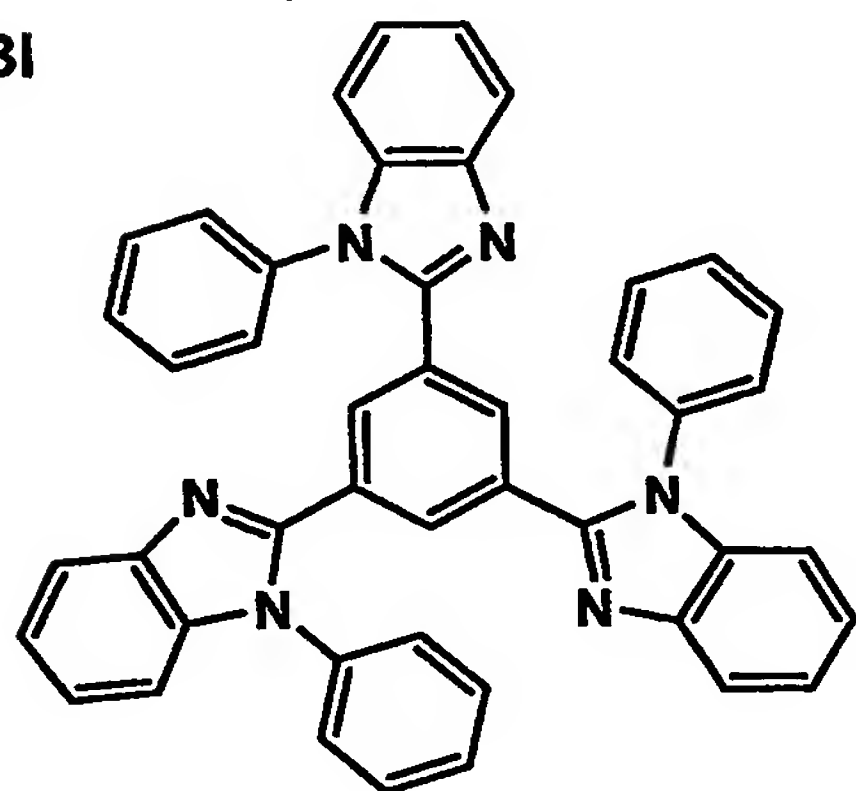
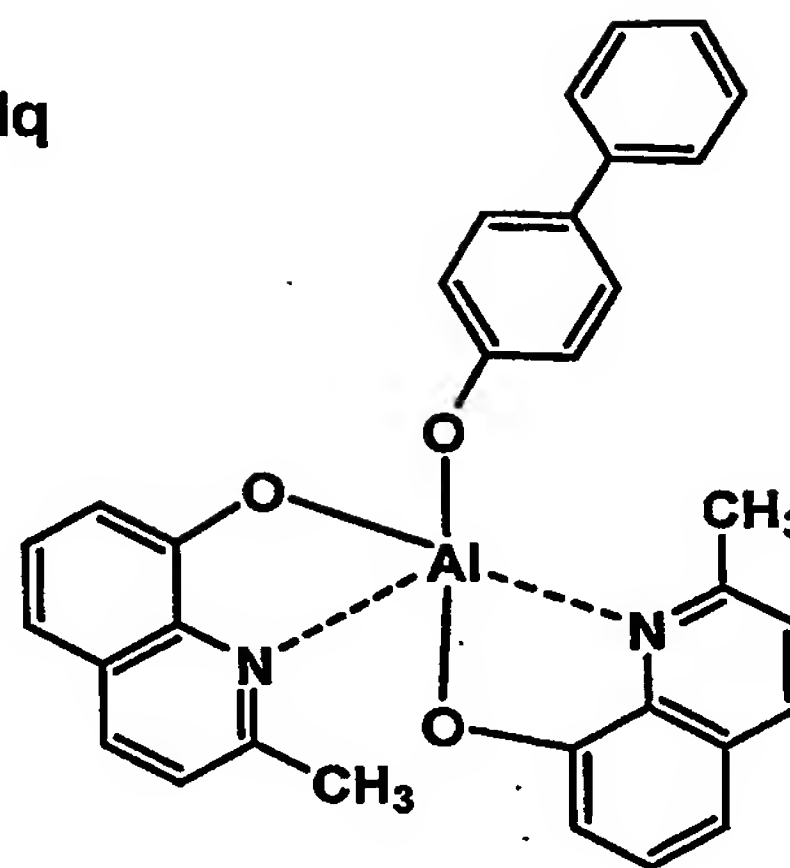


TABI



pf-7y



**TPBI****BAIq**

〈有機EL素子1-1～1-16の評価〉

以下のようにして作製した有機EL素子1-1～1-16の評価を行い、その結

5 果を表1に示す。

(発光輝度)

分光放射輝度計CS-1000 (ミノルタ製) で測定した輝度を用いて発光輝度
(cd/m²) を求めた。

(外部取りだし量子効率)

10 作製した有機EL素子について、23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5mA/

cm^2 定電流を印加した時の外部取り出し量子効率 (%) を測定した。なお測定には同様に分光放射輝度計 CS-1000 (ミノルタ製) を用いた。

(発光寿命)

23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で 2.5 mA/cm^2 の一定電流で駆動したときに、輝度が発光開始直後の輝度 (初期輝度) の半分に低下するのに要した時間を測定し、これを半減寿命時間 ($\tau_{0.5}$) として寿命の指標とした。なお測定には分光放射輝度計 CS-1000 (ミノルタ製) を用いた。

表1の輝度、外部取り出し量子効率、発光寿命の測定結果は、有機EL素子1-1を100とした時の相対値で表した。

10 【表1】

有機EL素子	正孔阻止材料			発光輝度 (相対値%)	外部取り出し量子効率 (相対値%)	発光寿命 (相対値%)	備 考
	化合物名	HOMO	LUMO				
1-1	BC	-5.8	-1.3	100	100	100	比較例
1-2	Pf-7y	-7.1	-2.2	121	120	113	比較例
1-3	TPBI	-5.7	-1.2	118	118	150	比較例
1-4	BAlq	-5.1	-1.4	76	72	667	比較例
1-5	Cz1	-5.6	-1.7	97	97	83	比較例
1-6	Cz2	-5.5	-2.0	95	94	90	比較例
1-7	TABI	-6.8	-2.5	115	116	95	比較例
1-8	30	-6.1	-1.8	151	152	874	本発明
1-9	31	-6.2	-1.9	148	146	852	本発明
1-10	43	-6.5	-2.1	143	145	832	本発明
1-11	45	-5.8	-1.3	138	141	755	本発明
1-12	47	-6.6	-1.9	148	150	792	本発明
1-13	48	-6.8	-2.3	144	145	775	本発明
1-14	49	-6.0	-1.6	152	157	810	本発明
1-15	53	-5.9	-1.5	139	137	712	本発明
1-16	57	-6.3	-1.8	149	150	825	本発明

表1から、本発明の有機EL素子は、発光輝度、外部取り出し量子効率に非常に優れており、さらに長寿命であることが分かった。

実施例 2

〈有機EL素子2-1~14の製作〉

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO（インジウムチンオキシド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA
5 45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行った。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにm-MTDATXAを200mg入れ、別のモリブデン製加熱ボートにACZ1を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱
10 ボートにバソキュプロイン（BC）を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-12を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにAlq3を200mg入れ、真空蒸着装置に取り付けた。

ついで、真空槽を 4×10^{-4} Paまで減圧した後、m-MTDATXAの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで透明支持基板に
15 蒸着し50nmの正孔輸送層を設けた。更に、ACZ1とIr-12の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.2nm/sec、0.012nm/secで前記正孔輸送層上に共蒸着して30nmの発光層を設けた。

更に、BCの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1nm/secで前記発光層の上に蒸着して膜厚10nmの正孔阻止層を設けた。

20 更に、Alq3の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、打撃速度0.1nm/secで前記正孔阻止層上に蒸着して膜厚40nmの電子輸送層を設けた。

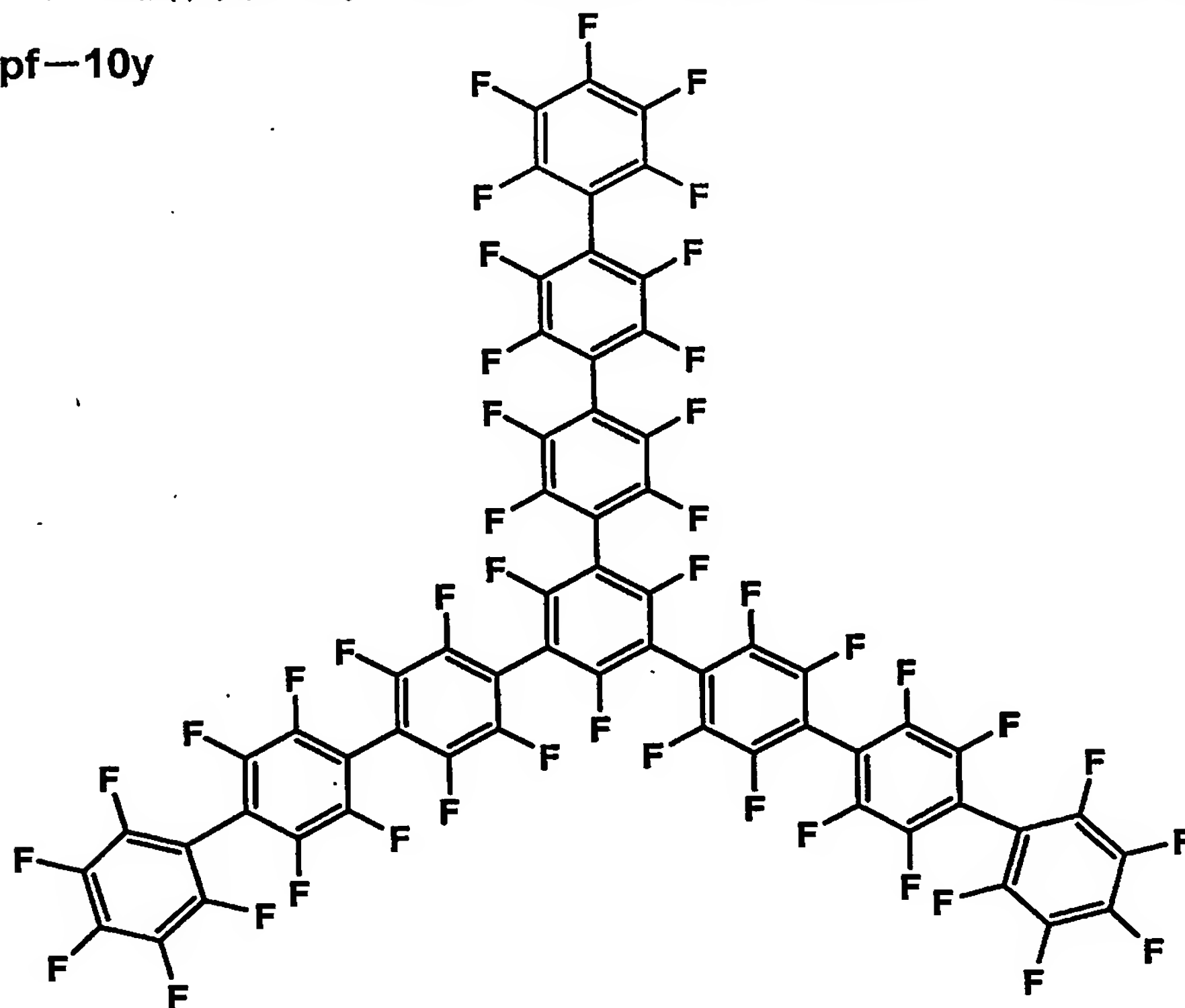
なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続き陰極バッファ層としてフッ化リチウム0.5nmを蒸着し、更に、ア

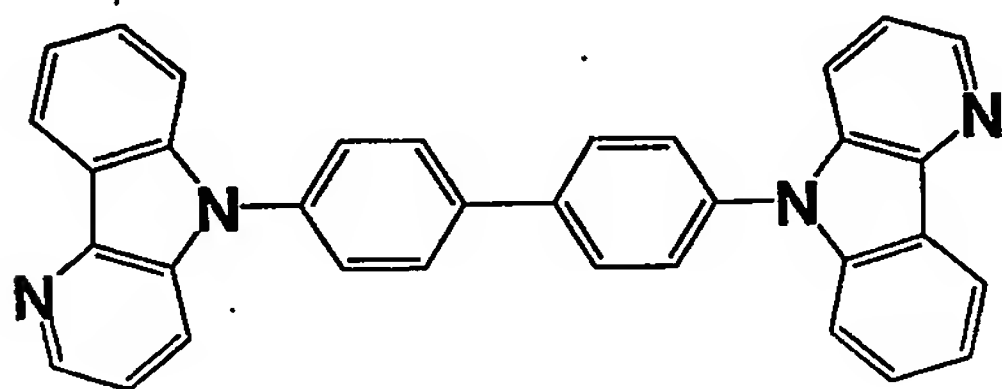
ルミニウム 110 nm を蒸着して陰極を形成し、有機 EL 素子 2-1 を作製した。

有機 EL 素子 2-1 の作製において、BC を表 2 に示す有機 EL 素子用材料に置き換えて正孔阻止層を形成した以外は有機 EL 素子 2-1 と同じ方法で 2-2 ~ 2-16 を作製した。上記、および、表中で使用した化合物の構造を以下に示す。

pf-10y



ACZ1



〈有機 EL 素子 2-1 ~ 2-14 の評価〉

以下のようにして作製した有機 EL 素子 2-1 ~ 2-14 の評価を行い、その結果を表 2 に示す。

(発光輝度)

分光放射輝度計 CS-1000 (ミノルタ製) で測定した輝度を用いて発光輝度

(cd/m^2) を求めた。

(外部取りだし量子効率)

作製した有機EL素子について、 23°C 、乾燥窒素ガス雰囲気下で $2.5\text{mA}/\text{cm}^2$ 定電流を印加した時の外部取り出し量子効率(%)を測定した。なお測定に

5 は同様に分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)を用いた。

(発光寿命)

23°C 、乾燥窒素ガス雰囲気下で $2.5\text{mA}/\text{cm}^2$ の一定電流で駆動したときに、輝度が発光開始直後の輝度(初期輝度)の半分に低下するのに要した時間を測定し、これを半減寿命時間($\tau_{0.5}$)として寿命の指標とした。なお測定には分

10 光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)を用いた。

表2の輝度、外部取り出し量子効率、発光寿命の測定結果は、有機EL素子2-1を100とした時の相対値で表した。

【表2】

有機EL素子	正孔阻止材料			発光輝度 (相対 値%値)	外部取り出し 量子効率 (相対値%値)	発光寿命 (相対 値%値)	備 考
	化合物名	HOMO/eV	LUMO/eV				
2-1	BC	-5.8	-1.3	100	100	100	比較
2-2	Pf-7y	-7.1	-2.2	118	117	113	比較
2-3	Pf-10y	-7.1	-2.3	120	118	105	比較
2-4	TPBI	-5.7	-1.2	115	113	132	比較
2-5	BA1q	-5.1	-1.4	81	79	620	比較
2-6	Cz1	-5.6	-1.7	90	88	90	比較
2-7	Cz2	-5.5	-2.0	94	95	84	比較
2-8	TABI	-6.8	-2.5	104	102	90	比較
2-9	(7)	-5.7	-1.5	139	138	707	本発明
2-10	(14)	-6.2	-2.3	143	142	713	本発明
2-11	(51)	-6.6	-2.3	140	140	732	本発明
2-12	(52)	-6.2	-1.6	147	145	795	本発明
2-13	(55)	-6.0	-1.8	150	147	746	本発明
2-14	(63)	-5.9	-1.7	147	145	803	本発明

表 2 から、本発明の有機 EL 素子は、発光輝度、外部取り出し量子効率に非常に優れており、さらに長寿命であることが分かった。

実施例 3

〈フルカラー表示装置の作製〉

5 フルカラー表示装置 (1)

(青色発光有機 EL 素子)

実施例 1 で作製した有機 EL 素子 1-8 を用いた。

(緑色発光有機 EL 素子)

10 実施例 1 で作製した有機 EL 素子 1-8 において、I_r-12 に替えて I_r-1 を用いた以外は、有機 EL 素子 1-8 と同様の方法で作製した有機 EL 素子 1-8 G を用いた。

(赤色発光有機 EL 素子)

15 実施例 1 で作製した有機 EL 素子 1-8 において、I_r-12 に替えて I_r-9 を用いた以外は、有機 EL 素子 1-8 と同様の方法で作製した有機 EL 素子 1-8 R を用いた。

上記の赤色、緑色及び青色発光有機 EL 素子を、同一基板上に並置し、第 1 図に記載の形態を有するアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製し、第 2 図には、作製した前記表示装置の表示部 A の模式図のみを示した。即ち、同一基板上に、複数の走査線 5 及びデータ線 6 を含む配線部と、並置した複数の画素 3 (発
20 光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等) とを有し、配線部の走査線 5 及び複数のデータ線 6 はそれぞれ導電材料からなり、走査線 5 とデータ線 6 は格子状に直交して、直交する位置で画素 3 に接続している (詳細は図示せず)。前記複数の画素 3 は、それぞれの発光色に対応した有機 EL 素子、アクティブ素子で

あるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。この様に各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示装置

5 を作製した。

 該フルカラー表示装置を駆動することにより、発光輝度、発光効率が高く、長寿命なフルカラー動画表示が得られることを確認することができた。

実施例 4

 実施例1で作製した有機EL素子1-8において、Ir-12に替えてIr-6、

10 Ir-12 (Ir-6 : Ir-12 = 1 : 4) を用いた以外は、有機EL素子1-8と同様の方法で作製した有機EL素子1-8Wを作製した。

 有機EL素子1-8Wの非発光面をガラスケースで覆い、照明装置とした。照明装置は、発光輝度、発光効率が高く、長寿命である白色光を発する薄型の照明装置として使用することができた。第5図は照明装置の概略図で、第6図は照明装置の

15 断面図である。

産業上の利用可能性

 本発明により、発光輝度、発光効率が高く長寿命である有機エレクトロルミネセンス素子、照明装置および表示装置を提供することができた。

請求の範囲

1. 陽極と陰極との間にリン光性化合物を含有する発光層を少なくとも有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、
- 5 前記発光層と前記陰極との間にあり、前記発光層に隣接する隣接層を有し、
該隣接層に、HOMOが $-5.7\text{ eV} \sim -7.0\text{ eV}$ 、LUMOが $-1.3 \sim -2.3\text{ eV}$ であり電子吸引基を有する化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 10 2. 前記化合物は、HOMOが $-5.9\text{ eV} \sim -6.8\text{ eV}$ 、LUMOが $-1.6 \sim -2.1\text{ eV}$ であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 15 3. 前記電子吸引基は、 $-\text{CF}_3$ 、 $-\text{F}$ 、 $-\text{CN}$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}$ （Rはアルキル基を表す。）から選ばれる少なくとも一つであることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
4. 発光が青色であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 20 5. 発光が白色であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

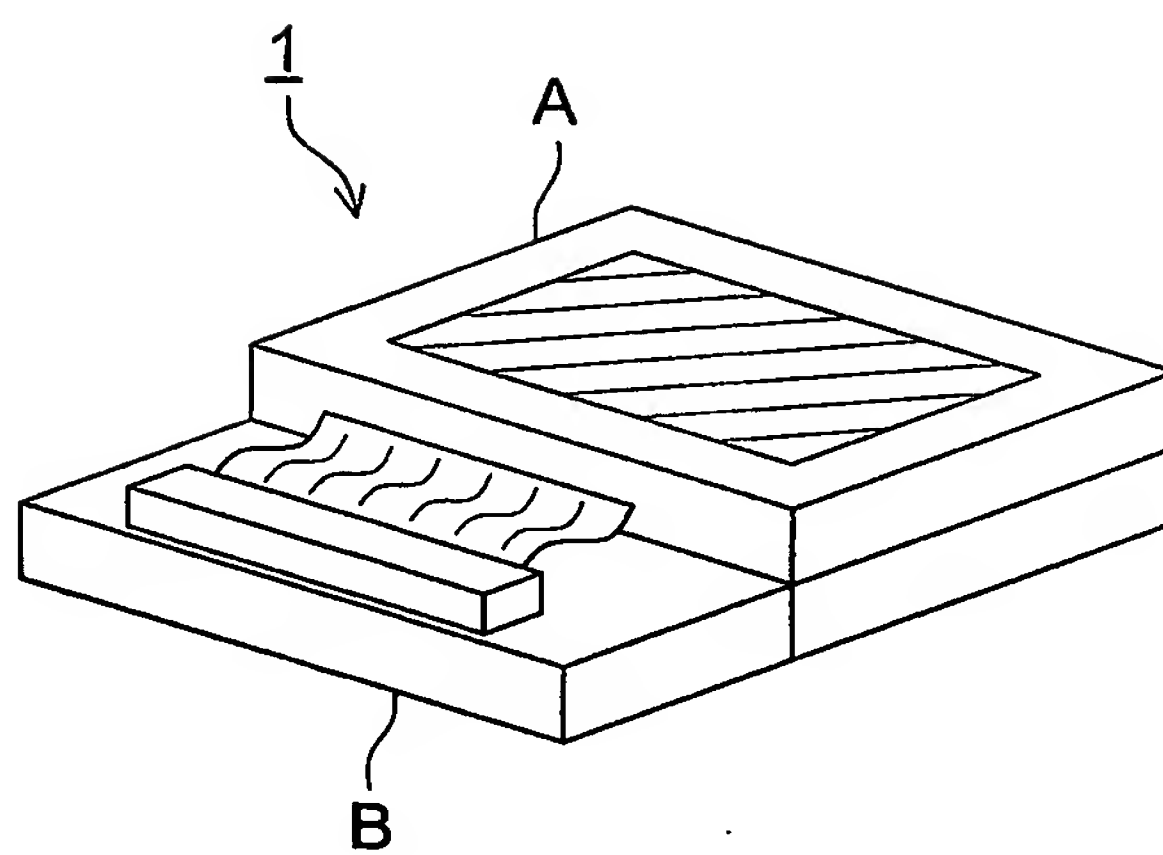
6. 請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする表示装置。

7. 請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする照明装置。

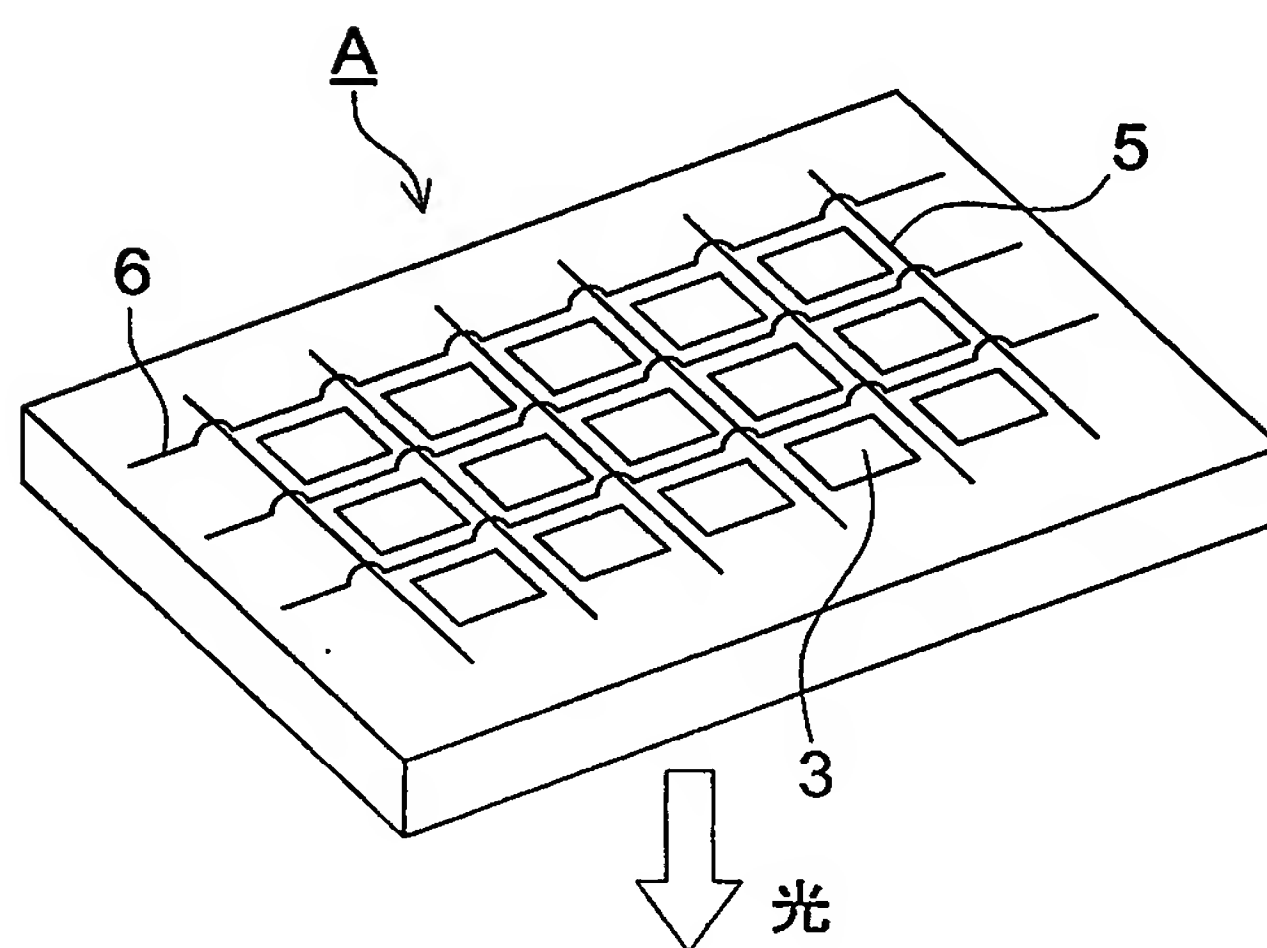
5

8. 請求の範囲第7項に記載の照明装置と、表示手段としての液晶素子とを具備することを特徴とする表示装置。

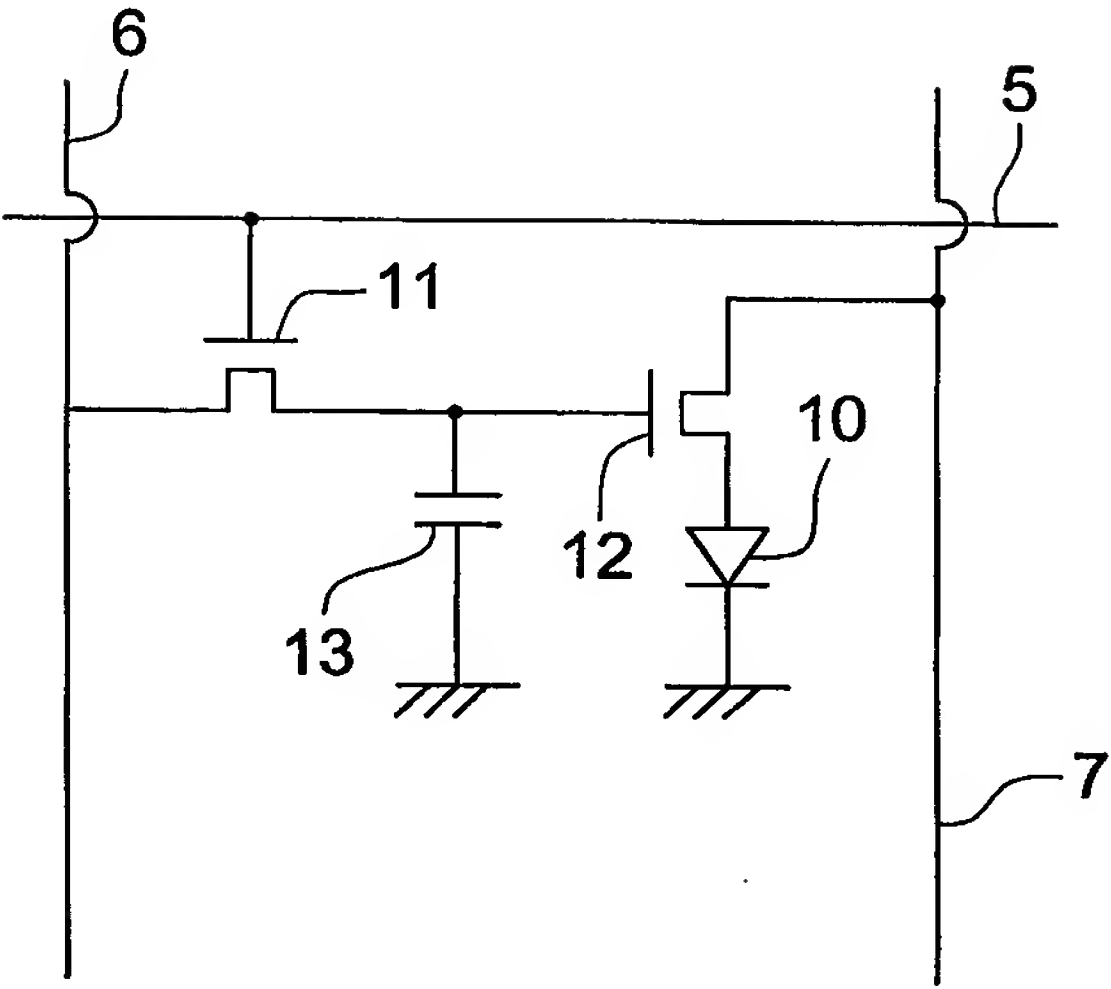
第 1 図



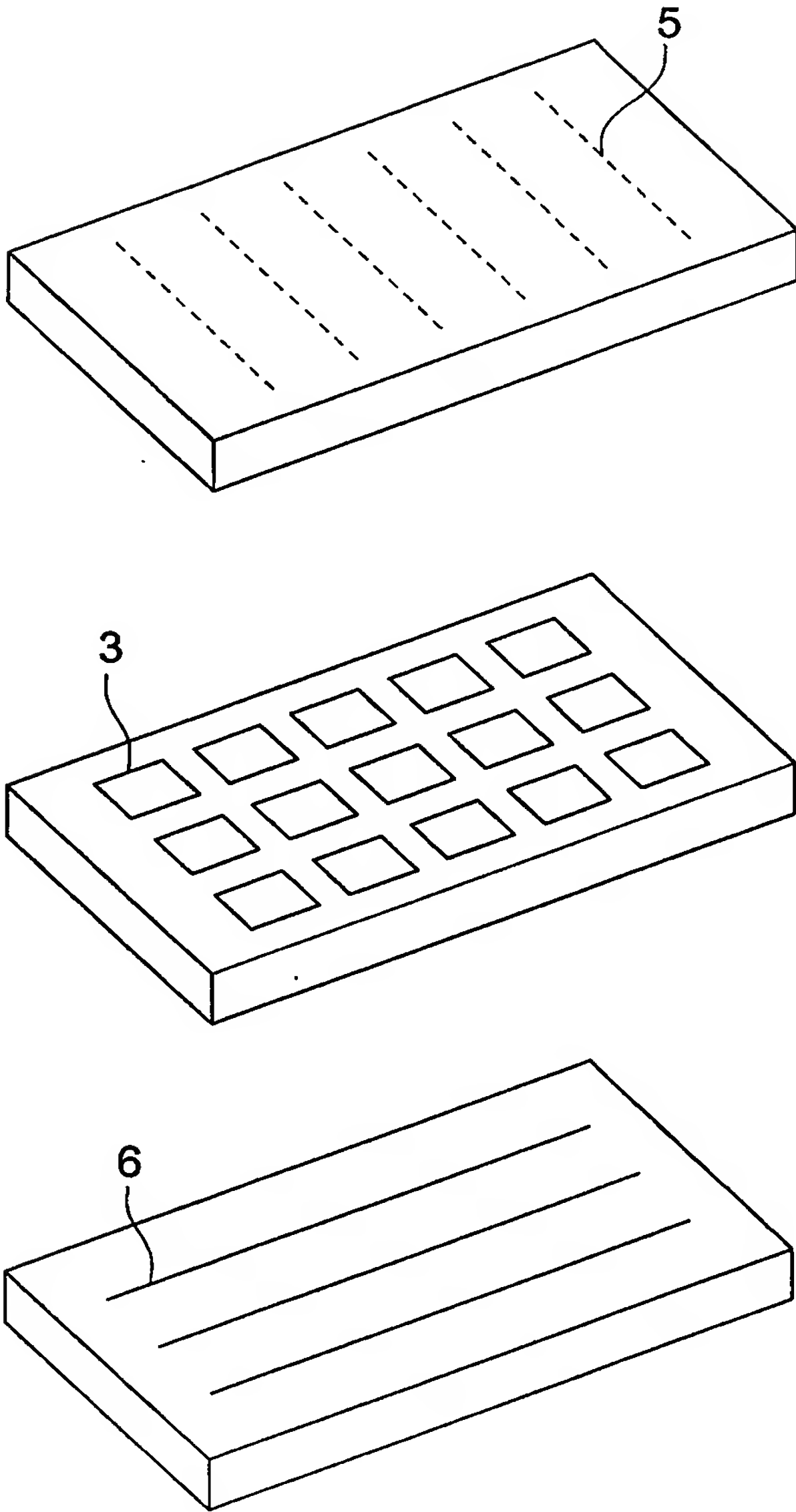
第 2 図



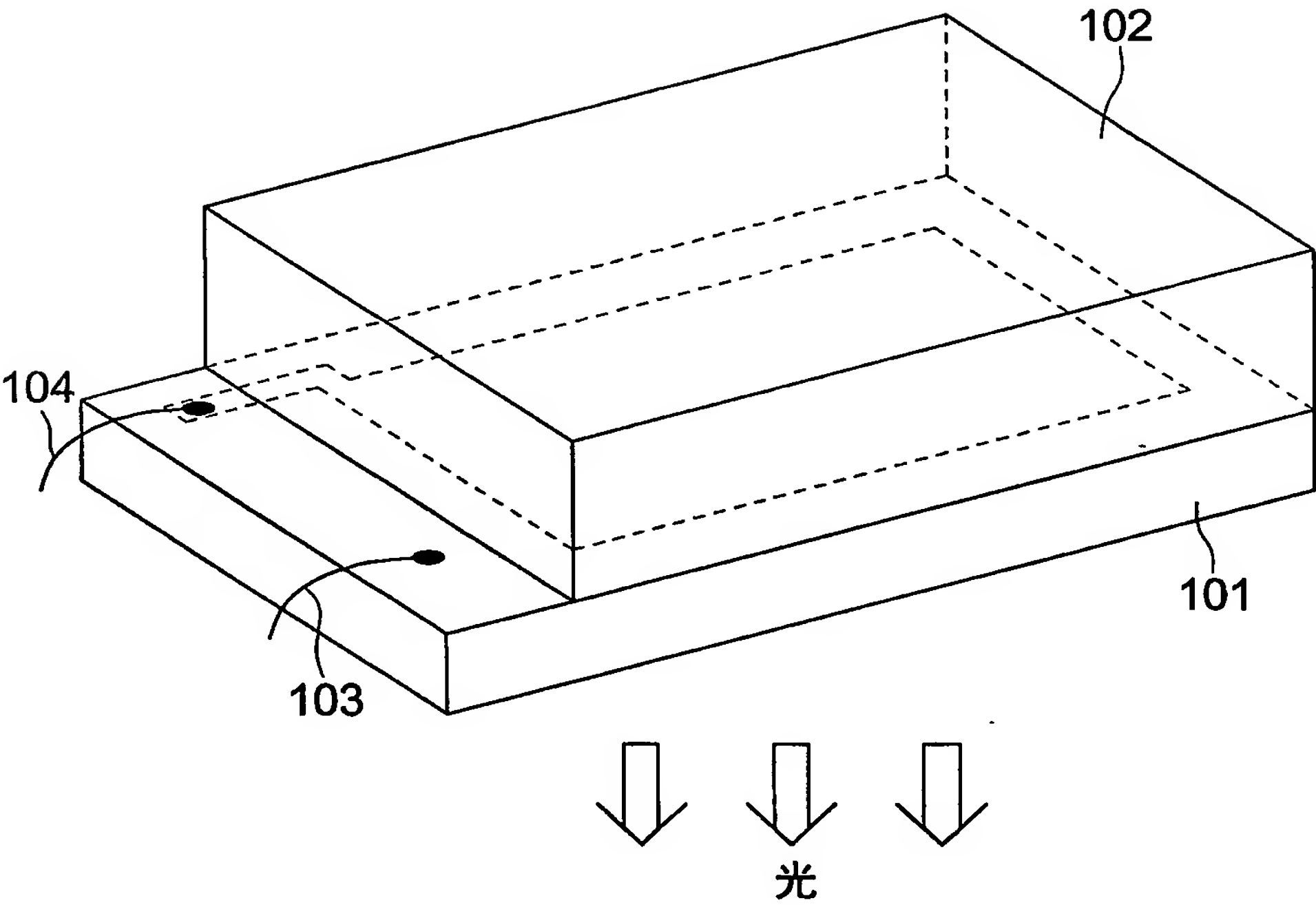
第 3 図



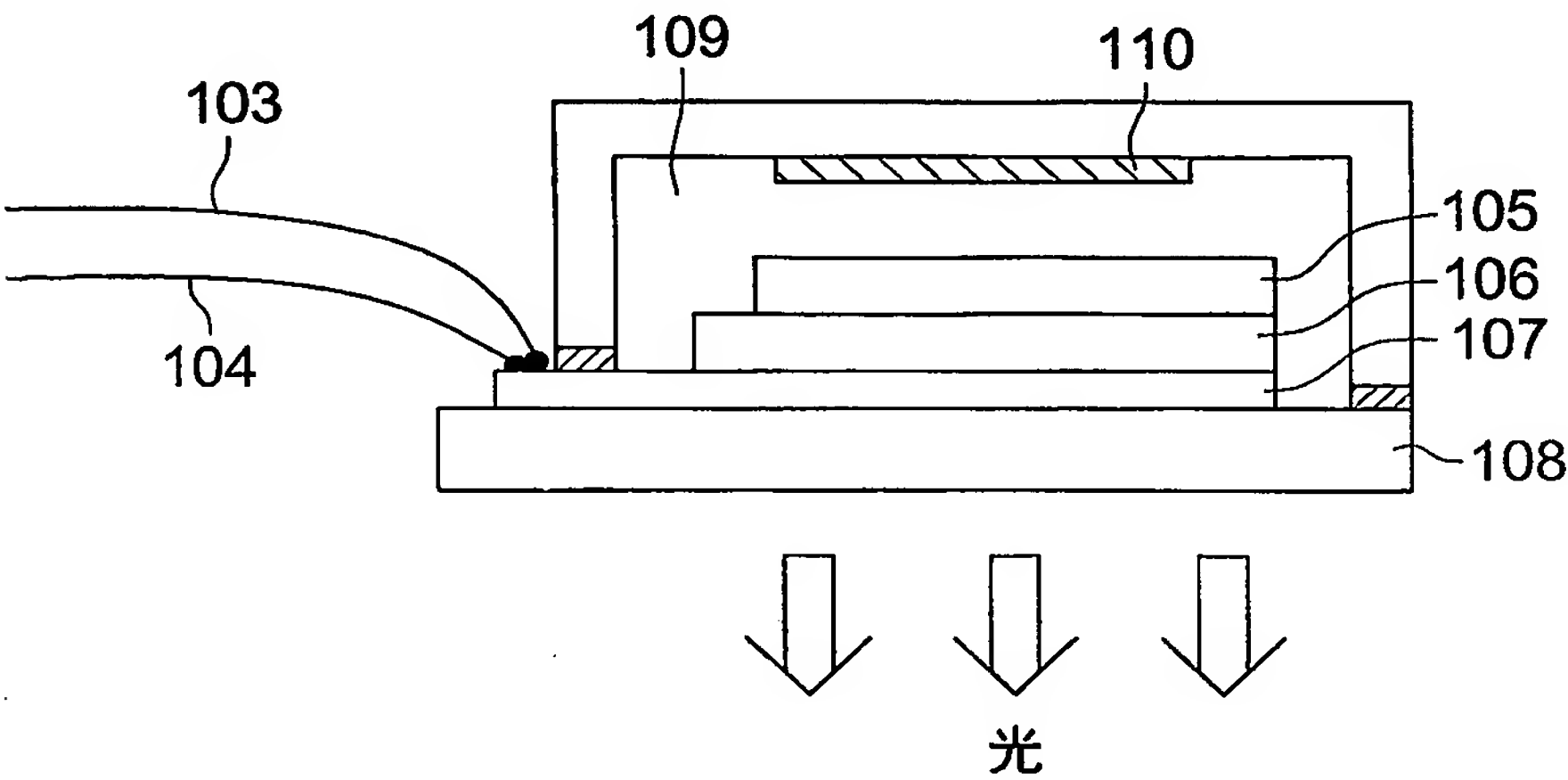
第 4 図



第 5 図



第 6 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/009391

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H05B33/22, H05B33/14, G02F1/13357

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H05B33/00-33/28, G02F1/13357

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-203683 A (Toyota Central Research And Development Laboratories, Inc.), 19 July, 2002 (19.07.02), Par. Nos. [0074] to [0085] & EP 1202608 A2	1-8
Y	JP 2003-45663 A (President of Osaka University), 14 February, 2003 (14.02.03), Par. Nos. [0002] to [0035] (Family: none)	1, 3-8
Y	JP 2000-150168 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 30 May, 2000 (30.05.00), Par. No. [0036] (Family: none)	1-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
20 October, 2004 (20.10.04)

Date of mailing of the international search report
02 November, 2004 (02.11.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/009391

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 8-8065 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 12 January, 1996 (12.01.96), Par. Nos. [0017] to [0057] (Family: none)	1-8
Y	JP 2003-86376 A (Nippon Hoso Kyokai), 20 March, 2003 (20.03.03), Mode 1; Par. Nos. [0098] to [0103] (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H05B33/22, H05B33/14, G02F1/13357

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H05B33/00-33/28, G02F1/13357

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2004年
日本国実用新案登録公報	1996-2004年
日本国登録実用新案公報	1994-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 2002-203683 A (株式会社豊田中央研究所) 2002.07.19, 【0074】-【0085】 & E P 1202608 A2	1-8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日
20.10.2004国際調査報告の発送日
02.11.2004国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号特許庁審査官 (権限のある職員)
森内 正明
2V 3208

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 2003-45663 A (大阪大学長) 2003.02.14 , 【0002】 - 【0035】 (ファミリー無し)	1, 3-8
Y	J P 2000-150168 A (凸版印刷株式会社) 2000.05.30 , 【0036】 (ファミリー無し)	1-8
Y	J P 8-8065 A (凸版印刷株式会社) 1996.01.12 【0017】 - 【0057】 (ファミリー無し)	1-8
Y	J P 2003-86376 A (日本放送協会) 2003.03.20 , 実施の形態1, 【0098】 - 【0103】 (ファミリー無し)	1-8